



# Contribution à l'étude de la fission par spectrométrie de masse en ligne

Jacques Chaumont

## ► To cite this version:

Jacques Chaumont. Contribution à l'étude de la fission par spectrométrie de masse en ligne. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Paris Sud - Paris XI, 1970. Français. NNT : . tel-00002381

**HAL Id: tel-00002381**

**<https://theses.hal.science/tel-00002381>**

Submitted on 11 Feb 2003

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Série A, n°  
N° d'ordre :

726

# THÈSE

PRESENTÉE

**A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY  
UNIVERSITÉ DE PARIS**

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES

PAR

*Jacques CHAUMONT*

---

Contribution à l'étude de la fission  
par spectrométrie de masse en ligne

Soutenue le 9 - 12 - 70 devant la Commission d'examen

Mme N. MARTY

Présidente

MM. A. MOUSSA

Examineurs

M. LEFORT

R. BERNAS

R. KLAPISCH



Je tiens à remercier en premier lieu Monsieur René Bernas qui m'a accueilli dans son laboratoire et m'a ainsi permis de m'initier à la recherche, de définir et de mener à bien ce travail. C'est à son contact et grâce à l'esprit qui règne dans l'équipe qu'il a formée, que j'ai acquis le goût des réalisations expérimentales.

Ce travail a été réalisé sous la direction de M. Robert Klapisch en collaboration avec Mme Catherine Thibault. Qu'ils trouvent ici l'expression de mon amitié et de ma reconnaissance pour l'aide constante qu'ils m'ont apportée et pour la formation que j'ai pu acquérir auprès d'eux.

M. R. Ferreau et M. M. Jacotin ont assuré la réalisation effective de l'appareil. Ils ont en outre participé à toutes les expériences. Je leur suis redevable de nombreuses améliorations et initiatives, et je voudrais rendre hommage ici à leur compétence comme à leur dévouement inlassable. Je remercie également Mme G. Le Scornet, M. E. Alorete et M. J. Biderman pour leurs multiples contributions à ce travail ainsi que Mme A. Ballouard, Mlle J. Caro et Mme M. Arianer.

MM. I. Amarel, Y. Nir-El, E. Roeckl et B. Tracy, au cours de leurs séjours respectifs dans notre laboratoire, ont participé activement aux expériences du groupe et c'est un plaisir pour moi de les remercier pour l'aide précieuse qu'ils m'ont ainsi accordée.

Le Professeur J. Alexander et le Professeur A.M. Pòskanzer m'ont fait bénéficier de leurs encouragements et de leurs conseils pour l'interprétation de mes résultats. Je les en remercie vivement.

Enfin toutes ces expériences ont été réalisées avec des faisceaux de particules et je voudrais remercier les nombreuses personnes qui m'ont prêté leur concours :

- Les équipes de conduite du synchro-cyclotron d'Orsay.
- MM. Ball et Maugin ainsi que les nombreuses personnes du groupe dirigé par M. Langeseth qui ont conduit le faisceau de protons pendant toute la durée de l'expérience effectuée au CERN.
- M. Joly et son groupe qui nous ont aimablement permis d'utiliser leur faisceau au réacteur EL 3.





## I N T R O D U C T I O N

Depuis la découverte de la fission, ce phénomène a donné lieu à une foule de travaux expérimentaux ou théoriques. Il est remarquable pourtant que, même dans le domaine de la fission induite par neutrons thermiques, aucune théorie n'ait encore pu rendre compte des faits essentiels d'une façon satisfaisante.

En ce qui concerne la fission induite par particules de haute énergie, son étude est par nature plus compliquée et les résultats expérimentaux sont plus rares encore. Un certain nombre de progrès récents, notamment depuis le symposium de Vienne (1969), laissent espérer que cette situation n'est pas sans remède et qu'à bref délai, une théorie de la fission intégrant les progrès réalisés dans la compréhension de la structure des noyaux déformés verra le jour.

Ceci donne donc un regain d'intérêt au travail expérimental sur la fission qui se poursuit depuis de nombreuses années et dont quelques faits importants commencent à émerger. On s'aperçoit alors que les données expérimentales dont on dispose sont encore bien incomplètes et il semble nécessaire, malgré une accumulation de résultats qui pourrait paraître considérable, de reprendre complètement un certain nombre de questions.

Pendant longtemps, une source importante de données sur la fission a été l'emploi de la radiochimie. Il est superflu de rappeler ici la foule de renseignements qui ont pu être apportés de cette manière : détermination des sections efficaces, distribution des énergies et angles des fragments par la méthode des reculs, etc...

Cependant la radiochimie souffre d'une limitation fondamentale : assez peu d'isotopes satisfont finalement aux conditions (période, nature des

rayonnements, etc...) qui rendraient son emploi commode. Devant la nécessité d'effectuer des études sur un grand nombre d'isotopes, on a été peu à peu conduit à employer des méthodes plus modernes.

En ce qui concerne la dynamique de la fission (spectres en énergie, distributions angulaires) l'emploi de détecteurs solides tend à supplanter de plus en plus la méthode des reculs. Citons en particulier les premiers travaux, réalisés à Orsay, par L. Kowalski <sup>(1)</sup> puis par C. Stephan <sup>(2)</sup>.

En ce qui concerne la statique (sections efficaces, distributions en masse et en charge) le problème expérimental est encore loin d'être résolu dans sa généralité. Toutefois, le travail que nous présentons le résout pour le cas particulier des éléments alcalins. En effet, la méthode de spectrométrie de masse en ligne nous a permis de déterminer les sections efficaces indépendantes de tous les isotopes du rubidium et du caesium quels que soient leurs modes de désintégration ( $\beta^-$ ,  $\beta^+$ , neutrons différés, etc...) et leur durée de vie (de moins de 100 ms à la stabilité).

Pour ce faire, nous avons repris la méthode définie dans les travaux antérieurs de R. Klapisch <sup>(3)</sup> et nous l'avons développée afin de mesurer avec précision des sections efficaces de réaction nucléaire (et de fission en particulier).

Comme on le sait les premières études de R. Klapisch avaient montré que la diffusion du lithium dans le graphite vers 1800°C était beaucoup plus rapide ( $T_{\text{Diff}} < 1$  sec) que dans les métaux à des températures comparables ( $T_{\text{Diff}}$  environ 30 minutes). Aussi les premières études de spectrométrie de masse en ligne avaient-elles porté sur la production de  ${}^{6,7,8,9}\text{Li}$  dans  ${}^{12}\text{C}$  bombardé par des protons de 150 MeV. Klapisch avait aussi indiqué la possibilité d'utiliser une cible composite afin de changer la nature de l'élément cible. Le principe en est le suivant : on alterne des feuilles minces de l'élément cible et de graphite, les fragments alcalins issus de la réaction nucléaire quittent la cible par recul et sont stoppés dans le graphite d'où ils sortent par diffusion thermique. Ils sont alors ionisés par émission thermoionique puis accélérés et analysés en masse dans le spectromètre.

I. Amarel <sup>(4)</sup> avait utilisé cette méthode dans la construction d'un spectromètre de masse en vue de la production pour des études de spectroscopie nucléaire, d'isotopes de rubidium et de caesium riches en neutrons produits

par fission de l'uranium. Cependant, si l'appareil réalisé démontrait la possibilité de mesurer des sections efficaces, de très nombreux problèmes restaient à résoudre avant de pouvoir entreprendre une étude de la fission.

Ces problèmes étaient de deux ordres :

1) L'étude et la réalisation des conditions permettant d'obtenir une bonne précision dans la mesure des sections efficaces :

a) une bonne séparation des différentes masses tout en conservant une forme de pic convenable et une bonne transmission.

b) la réduction à un niveau acceptable de la contamination par les isotopes naturels qui ne sont pas gênants pour la spectrométrie nucléaire.

c) l'obtention d'un vide élevé et très propre nécessaire pour effectuer des mesures précises.

d) l'étude approfondie des caractéristiques de notre méthode et des moyens à utiliser pour éliminer les principales causes d'erreur (sélectivité chimique, indépendance de sections efficaces, corrections de diffusion et de croissance radioactives, discriminations diverses).

2) La préparation de cibles variées et leur changement rapide ainsi que la mobilité de l'appareillage pour pouvoir travailler avec des faisceaux de particules différentes.

Dans une première partie nous décrirons l'appareillage que nous avons construit et présenterons les réponses que nous avons apportées aux différents problèmes.

Dans une seconde partie nous exposerons et discuterons les résultats obtenus.



## CHAPITRE I

### METHODE EXPERIMENTALE

Le spectromètre de masse que nous avons construit n'a, en tant que dispositif analytique, aucune caractéristique particulière. Les points sur lesquels nous avons dû porter notre attention sont essentiellement :

- la construction de la cible
- l'élimination de la contamination par les éléments naturels
- l'enregistrement des spectres de masse qui doit être adapté au travail auprès des accélérateurs.

Nous reviendrons sur ces points après avoir décrit brièvement l'appareil utilisé.

#### 1) Description générale du spectromètre.

La figure 1 montre le schéma de principe du spectromètre dont nous allons examiner les différents éléments.

##### - Source

La source représentée sur la figure 2 comprend :

- a) la cible qui est contenue dans un four porté à haute température afin de permettre la diffusion et l'ionisation des alcalins produits par les réactions nucléaires. Ce four de 6 mm de diamètre est constitué d'une feuille de tantale mince (25 à 50 microns) roulée en cylindre de façon à laisser libre une fente de 1 mm pour la sortie des produits et soudée par point sur des amenées de courant

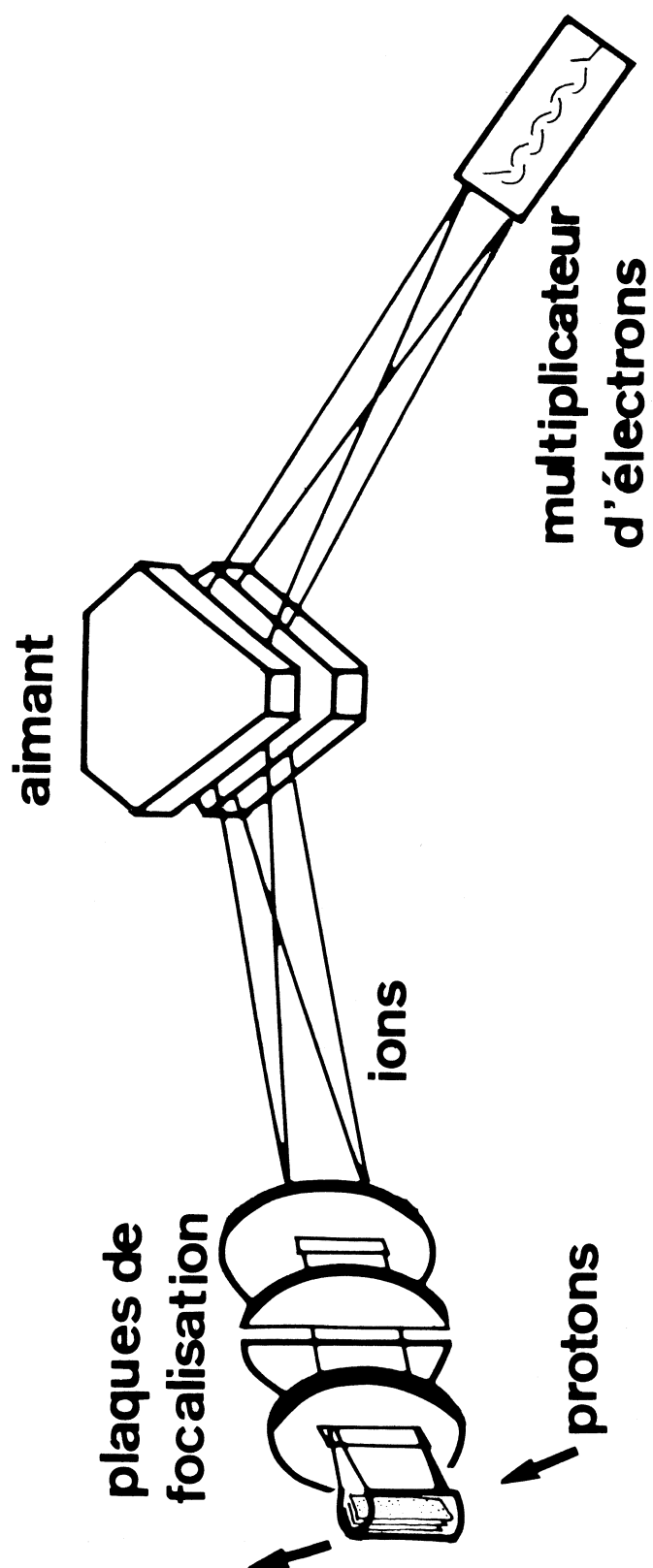


Fig. 1 - Schéma de principe du spectromètre

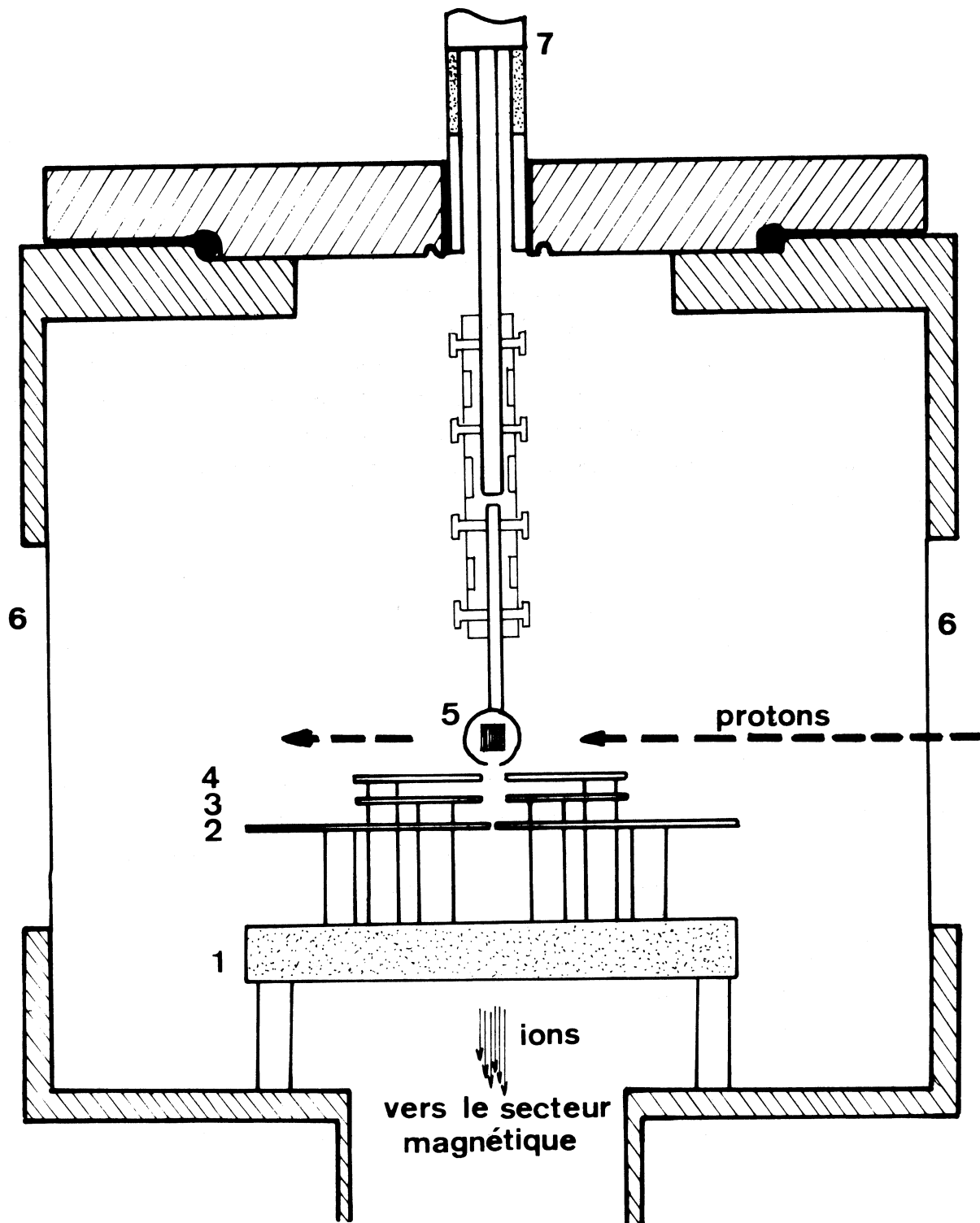


Fig. 2 - Détail de la source

- 1 - Couronne isolante en oxyde de beryllium
- 2,3,4 - Electrodes d'accélération et focalisation
- 5 - Four contenant la cible
- 6 - Fenêtre mince en acier
- 7 - Passage isolant en alumine



en tantale épaisses. Le chauffage se fait par effet Joule et la température atteint 2000°C pour une puissance de 250 W. L'ensemble est fixé sur une bride en acier inoxydable à l'aide de deux passages isolés par de la céramique.

b) Trois électrodes qui constituent un système optique très simple dérivé de celui de Gradsztajn (5). Elles sont portées par une couronne en oxyde de beryllium. Ce matériau qui présente l'avantage d'être à la fois un bon isolant électrique et un bon conducteur de la chaleur permet de maintenir à une température acceptable les électrodes soumises au rayonnement thermique du four. Le système est fixé à demeure dans le spectromètre, ce qui simplifie les nombreuses opérations de changement de cible nécessitées par nos expériences. La tension d'accélération appliquée est de 5 kV.

#### - Champ magnétique

Le faisceau ainsi formé est analysé en masse par un secteur magnétique de rayon moyen 30 cm, d'angle 90°, de champ uniforme, utilisé en position symétrique.

#### - Détection

La détection est effectuée, après une fente de définition placée dans le plan focal du secteur magnétique, par un multiplicateur d'électrons de très grand gain. Ce gain est tel que chaque ion incident sur la première dynode donne naissance à une impulsion qui peut être envoyée directement sur un discriminateur et enregistrée par un compteur électronique approprié. Nous disposons ainsi d'une information numérique qu'il est facile de traiter par les techniques utilisées couramment en physique nucléaire.

#### - Résolution

La figure 3 montre un spectre typique de caesium. Le pouvoir séparateur d'un secteur magnétique tel que celui que nous utilisons est donné par :

$$P.S. = \frac{M}{\Delta M} = \frac{R}{S_1 + S_2 + R \left( \alpha^2 + \frac{\Delta V}{V} + \frac{2\Delta H}{H} \right)}$$

avec R rayon de courbure moyen

S<sub>1</sub> largeur de la fente de définition à la source

S<sub>2</sub> largeur de la fente de définition au collecteur

$\alpha$  demi angle d'ouverture du faisceau  
 $\Delta V$  fluctuation de la tension d'accélération  
 $\Delta H$  fluctuation du champ magnétique.

Dans notre cas nous avons  $R = 300$  mm,  $S_1 = 0,3$  mm,  $S_2 = 0,85$  mm,  $V = 5000$  volts et nous obtenons un pouvoir séparateur mesuré à 1% de la hauteur des pics, voisin de 200, ce qui est compatible avec une ouverture angulaire  $\alpha = 0,02$  rad, une valeur de  $\Delta V$  de 2,5 volts provenant essentiellement de la tension alternative de chauffage du four et une stabilité du champ magnétique de  $10^{-4}$ .

Dans ces conditions le rendement du spectromètre pour le rubidium et le caesium est de 4% environ, ceci comprenant l'efficacité d'ionisation, les pertes dans le système optique, la transmission à travers le secteur magnétique et l'efficacité de détection du multiplicateur d'électrons.

#### - Pompage

Les premiers spectromètres de masse en ligne construits étaient équipés de pompes à diffusion d'huile. A condition d'utiliser en permanence des pièges à azote liquide on obtenait un vide suffisant ( $10^{-6}$  mm Hg). Cependant cette servitude conduisait à des pertes de temps importantes pour le travail auprès des accélérateurs et par ailleurs les traces d'hydrocarbures, qui existent toujours avec des pompes à diffusion, produisent par décomposition thermique une certaine quantité d'ions qui peuvent être très gênants pour la détection d'événements rares.

Ceci nous a conduit à adopter pour le pompage principal une pompe turbomoléculaire de vitesse 260 l/sec qui présente les avantages suivants :

1. Le vide produit est extrêmement propre si bien qu'il n'est pas nécessaire d'utiliser de baffle ou de piège à azote liquide et les pics d'hydrocarbures disparaissent totalement.

2. L'absence de baffle permet de conserver au niveau de l'enceinte toute la vitesse de pompage. Le vide limite passe ainsi de  $10^{-6}$  à  $3 \cdot 10^{-8}$  mm Hg. Ce vide élevé permet en particulier de réduire l'oxydation du four par le gaz résiduel.

3. Lors d'un changement de cible, le temps nécessaire pour passer de la pression atmosphérique à un vide de  $10^{-6}$  mm Hg, malgré le dégazage de la cible, n'est que d'une heure.

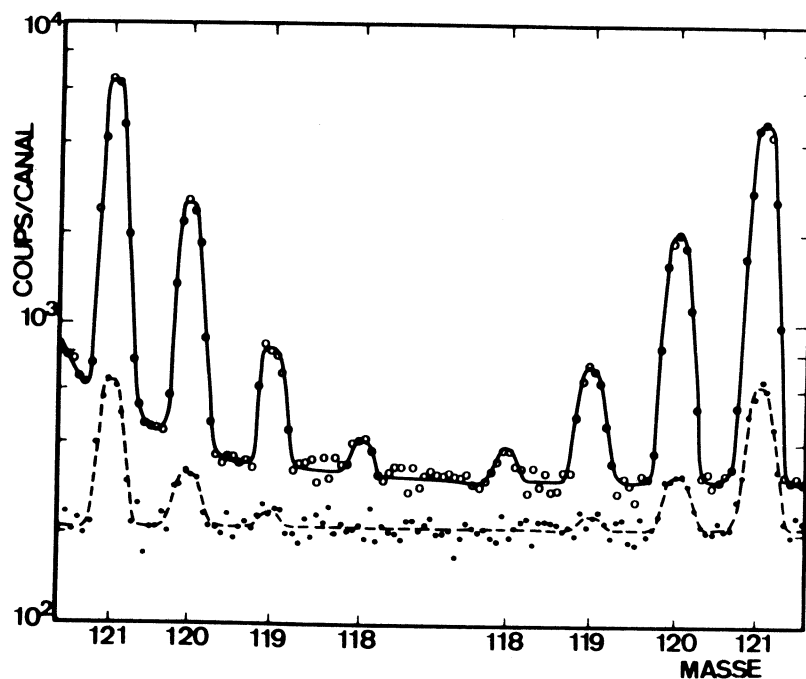


Fig. 3 - Spectre de caesium montrant le pouvoir séparateur du spectromètre. Le spectre 1 a été enregistré juste après le passage des protons. Nous remarquons à gauche la décroissance du bruit de fond dû aux protons et au centre, deux pics prouvant l'existence de  $^{118}\text{Cs}$ . Le spectre 2 a été enregistré juste avant le passage des protons. Nous reviendrons sur ce point au chapitre II.

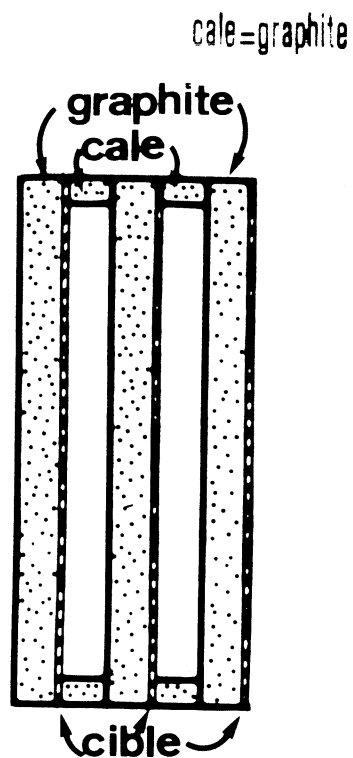


Fig. 4 - Construction de la cible. Les cales qui maintiennent l'écartement entre les plaquettes de graphite sont importantes pour une diffusion rapide.

La seule précaution à prendre est d'interposer entre la pompe et le spectromètre un soufflet métallique afin d'éliminer les vibrations. Pour améliorer le vide au niveau du multiplicateur nous utilisons en outre une pompe ionique de vitesse 15 l/sec qui, à condition d'interposer quelques chicane, n'introduit pas de bruit de fond supplémentaire.

#### - Montage mécanique

Pour entreprendre une étude détaillée de la fission, il était nécessaire de transporter le spectromètre auprès de différents accélérateurs pour travailler à des énergies variées. L'appareil construit devait donc être mobile et très robuste. Ce but a été atteint : en effet, l'ensemble mécanique peut être transporté sans être démonté et nous avons effectué des expériences à Orsay, à Saclay et au CERN sans qu'aucun réglage ne soit nécessaire après le transport. Seules les connections électriques doivent être rétablies.

#### 2) Construction de la cible.

La haute température (1800°C environ) nécessaire pour que la diffusion des alcalins soit rapide, impose que, soit l'élément cible, soit au moins un de ses composés, soit très réfractaire.

Nous utilisons des plaquettes de graphite de dimensions 15 x 4,3 mm<sup>2</sup> et de 70 microns environ d'épaisseur. Nous avons donc deux cas à considérer.

a) Dans le cas d'un élément cible réfractaire (Ta, Nb, Mo) on découpe des feuilles de mêmes dimensions que les plaquettes et d'épaisseur convenable.

b) Dans le cas d'un élément non réfractaire mais possédant un carbure réfractaire, on évapore sous vide l'élément (Si) ou on pulvérise une solution aqueuse du nitrate sur les plaquettes chauffées vers 200° (V, U, Th). Le nitrate est décomposé thermiquement pour donner une couche d'oxyde. Par chauffage sous vide on obtient une couche de carbure adhérent. Les épaisseurs déposées sont déterminées par pesées.

La figure 4 montre la disposition de la cible : les plaquettes sont montées en interposant des cales de même épaisseur de façon à diminuer les effets de surface et ainsi accélérer la sortie des produits. Les cales sont maintenues en place par une colle organique qui par décomposition thermique produit une mince couche de carbone suffisante pour maintenir l'adhérence. La cible a

pour dimensions  $4 \times 4,3 \times 15 \text{ mm}^3$  et contient 20 à 22 plaquettes de graphite.

### 3) Contamination par les éléments naturels.

La cible, une fois montée est placée dans un four et chauffée sous vide afin de réduire à un niveau acceptable la contamination par les isotopes naturels. Cependant nous avons constaté que si les rubidium et caesium naturels étaient émis rapidement et après quelques heures de chauffage ils ne représentaient plus que des faisceaux ioniques de quelques ions par seconde, il n'en était pas de même pour les alcalino-terreux strontium et baryum. Le principal problème se posait au niveau du baryum dont le rendement par émission thermionique est relativement élevé. Ce baryum provient essentiellement des parois du four en tantale. Un four neuf au début du dégazage émet environ  $10^7$  ions  $\text{Ba}^+/\text{sec}$  vers  $1800^\circ\text{C}$  et cette quantité ne diminue que très lentement avec le temps. Ce courant ionique élevé n'est pas surprenant car une concentration de 1 ppm seulement dans les parois du four correspond à  $2 \cdot 10^{-7}$  g de baryum qui peuvent produire, compte tenu du rendement du spectromètre, environ  $10^{12}$  ions.

Le courant ionique pour un isotope de caesium produit par réaction nucléaire étant de l'ordre de  $10^4$  ions/sec, nous voyons qu'il existait un problème de purification très important et difficile à résoudre, car il est nécessaire de faire diffuser le baryum dans le tantale de façon à en réduire la concentration d'un facteur compris entre  $10^2$  et  $10^3$ . Or la vitesse de diffusion du baryum dans le tantale ne devient appréciable qu'à des températures supérieures à  $2000^\circ\text{C}$ . A ce stade, des réactions chimiques se produisent entre le graphite de la cible et le tantale qui se trouve rapidement détruit.

Nos efforts ont porté sur deux points :

a) Etude de feuilles de tantale de diverses provenances afin de choisir celles contenant la plus faible quantité possible de baryum.

b) Mise au point d'une technique permettant de démonter le four vide après un dégazage de deux jours à  $2300^\circ$ . La cible est alors placée dans le four qui est ressoudé définitivement et nous procédons à un nouveau dégazage à la température maximum de  $2000^\circ\text{C}$ , suffisante pour éliminer les pollutions superficielles introduites par ces manipulations.

La pollution de baryum peut ainsi être réduite à environ  $10^5$  ions/sec à la masse 138 et  $10^4$  ions/sec aux masses 134 à 137 ce qui est en général suffisant pour nos mesures.

#### 4) Enregistrement des spectres de masse.

Dans ce qui suit, nous ne considérerons que le cas d'un faisceau pulsé qui est le cas le plus favorable (P.S. C.E.R.N. environ  $6.10^{11}$  protons toutes les 10 secondes). Dans les autres cas (synchrocyclotron d'Orsay, neutrons thermiques) nous nous ramenons au cas précédent en effectuant des irradiations courtes et répétées. Notre détecteur étant fixe, l'enregistrement du spectre de masse ne peut se faire qu'en modulant le champ magnétique ou le champ électrique d'accélération. Nous verrons au chapitre suivant que la vitesse de diffusion des alcalins est très grande, ce qui nous impose un balayage très rapide afin de limiter l'influence de la variation du courant ionique. Nous travaillons à 40 cycles par seconde environ et ceci ne peut se faire simplement que par un balayage électrique qui a l'inconvénient d'introduire une discrimination supplémentaire. Nous reviendrons sur ce point plus loin.

Le tableau 1 montre le diagramme de fonctionnement de l'ensemble.

Le signal d'un générateur de signaux triangulaires est très fortement amplifié, soit par un amplificateur à lampes dont la tension de sortie peut atteindre 400 volts crête-crête, soit par un amplificateur à transistors suivi d'un transformateur type "haute fidélité" de rapport 100 pouvant donner 1000 volts crête-crête et dont la bande passante est suffisante pour ne pas déformer le signal. Ce signal est ajouté à la tension constante de 5 kV alimentant la source. Nous obtenons ainsi un balayage autour d'un point moyen fixe. Nous avons choisi un balayage triangulaire plutôt qu'une dent de scie car il nécessite une bande passante plus faible et donne en plus une condition de symétrie sur le spectre, ce qui nous permet de déceler des accidents éventuels.

La figure 5 montre le principe de l'enregistrement sur multi-échelle. Une impulsion synchrone du cycle de balayage permet de déclencher le multiéchelle dont l'avance adresse est pilotée par une horloge. Le nombre de canaux et le temps par canal sont réglés de telle sorte que le multiéchelle termine son cycle une fraction de milliseconde avant le générateur de balayage. Il peut ainsi redémarrer sur le premier canal au début du cycle suivant et chaque cycle est additionné aux précédents. Si la fréquence et l'amplitude du balayage sont bien stables, chaque canal correspond toujours à la même petite portion du spectre qui se trouve ainsi enregistrée.

Il est souhaitable que la période T du cycle de balayage soit

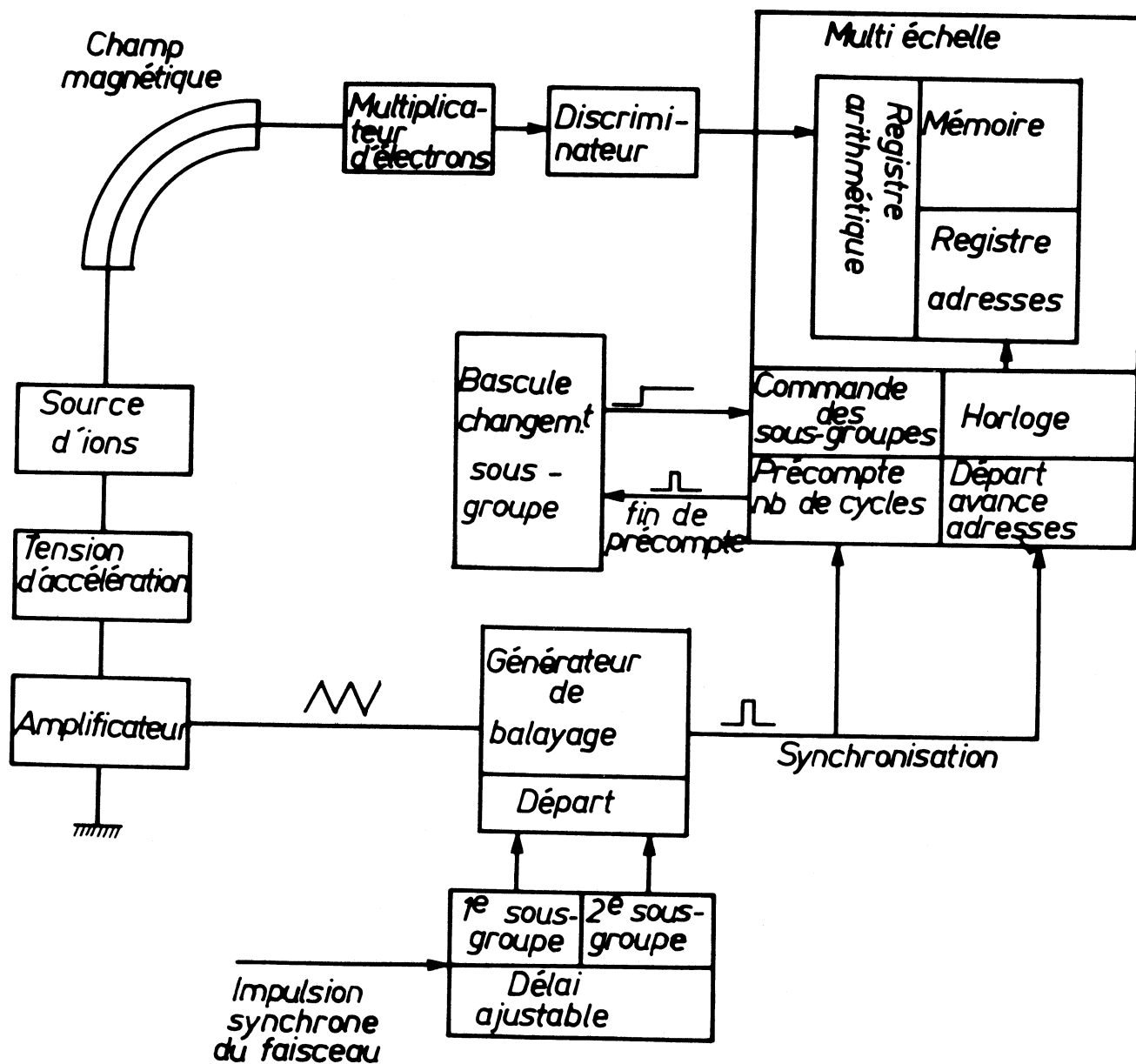


Tableau 1 - Diagramme de fonctionnement de l'ensemble électronique.

aussi courte que possible afin de limiter l'influence, sur les spectres enregistrés, de la variation du courant ionique liée à la diffusion des alcalins. Par ailleurs nous avons besoin d'un nombre minimum N de canaux pour définir un spectre de masse. Le temps t imparti à chaque canal sera donc :

$$t = \frac{T}{N}$$

Ces deux conditions tendent à réduire la valeur de t qui est limitée par les caractéristiques du multiéchelle car cet appareil présente un temps mort en passant d'un canal au suivant. Il est donc nécessaire de trouver un compromis.

Le premier multiéchelle utilisé était un bloc mémoire Intertechnique BM 25 de temps mort 16  $\mu$ s. Nous avons choisi de stocker pendant 100  $\mu$ s par canal sur 256 canaux soit une fréquence un peu inférieure à 40 cycles par seconde, et 16% de pertes. Compte tenu de la forme de nos pics, nous avons besoin d'environ 20 canaux pour définir un pic dont 5 canaux correspondent au sommet. La distance entre les pics étant proportionnelle à l'écart relatif de masse, il nous est possible d'enregistrer en même temps 2 masses pour le potassium, 3 pour le rubidium et 4 à 5 pour le caesium. Nous utilisons actuellement un bloc mémoire Intertechnique SA 44 de temps mort 5  $\mu$ s. Dans les mêmes conditions les pertes sont donc réduites à 5%.

Un précompte du nombre de cycles permet d'effectuer le balayage pendant le temps désiré après chaque passage du faisceau de protons lorsque le rapport signal sur bruit est le plus favorable. Le générateur de signaux peut lui-même être déclenché de façon à ce que le balayage commence toujours au même instant après l'irradiation de la cible. Nous verrons au chapitre suivant que pour éliminer les contaminations il est nécessaire d'effectuer un second balayage enregistré sur un autre sous-groupe du multiéchelle pendant un temps identique, juste avant l'irradiation suivante. Les spectres obtenus par la différence entre ces deux balayages permettent après normalisation d'obtenir la distribution complète pour chaque élément. Il nous faut cependant signaler que les distributions obtenues ne sont que relatives car il n'est pas possible de connaître avec précision le rendement du spectromètre et de plus ce rendement est variable avec l'élément considéré. Pour obtenir les sections efficaces absolues il est nécessaire de connaître la section efficace, mesurée par radiochimie, d'au moins un isotope de chaque distribution.



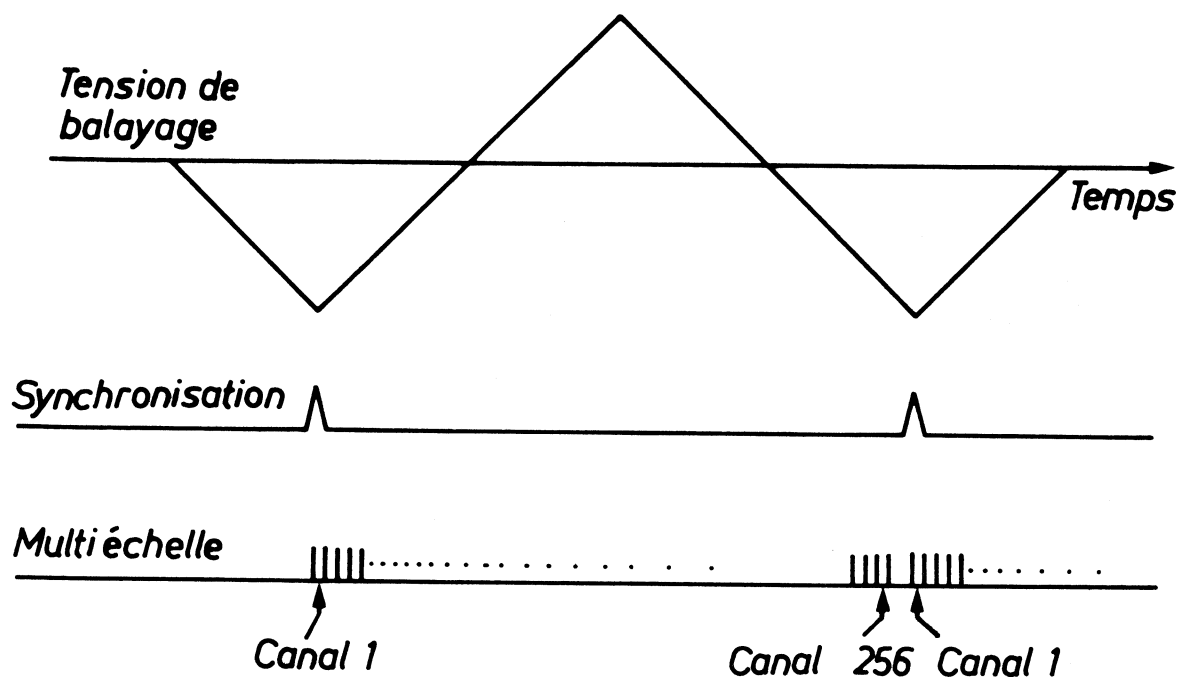


Fig. 5 - Principe de l'enregistrement sur multiéchelle. Si la fréquence et l'amplitude du balayage sont stables, chaque canal correspondra toujours à la même portion du spectre.

	Li	Li/Be	Na	Na/Al	K	K/Ca	Rb	Rb/Sr	Cs	Cs/Ba
Ta 1500°	$2 \cdot 10^{-4}$	$10^{10}$	$10^{-3}$	350	0.15	$10^4$	0.38	6000	0.78	1000
Ta 1800°	$6 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^8$	$26 \cdot 10^{-3}$	350	0.17	5000	0.37	2000	0.73	360
Re 1500°	$66 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{10}$	0.29	140	0.99	1000	0.99	76	1	4.5
Re 1800°	$86 \cdot 10^{-2}$	$10^9$	0.30	65	0.98	500	0.99	45	1	4

Tableau 2 - Rendement d'ionisation et sélectivité chimique. Pour chaque alcalin la première colonne indique le rendement d'ionisation sur des surfaces de tantale et de rhénium à 1500° et 1800°C, tandis que la seconde colonne indique les rapports du rendement d'ionisation de l'alcalin considéré avec celui de l'élément voisin le plus facile à ioniser.

## C H A P I T R E    I I

### *DISCUSSION DES CARACTERISTIQUES DE L'EXPERIENCE*

#### 1) Sélectivité chimique.

##### a) Principe :

Nous utilisons pour l'ionisation des produits de réaction nucléaire l'ionisation de surface qui est régie par la loi de Saha-Langmuir :

$$\frac{n^+}{n^0} = \frac{g^+}{g^0} \exp (W - \phi)/KT$$

$n^+$  : nombre d'ions quittant la surface

$n^0$  : nombre d'atomes quittant la surface

$g^+$  et  $g^0$  : poids statistiques respectifs des deux espèces

$W$  : travail d'extraction des électrons pour la surface considérée

$\phi$  : potentiel d'ionisation de l'élément.

Le tableau 2 montre le rendement d'ionisation pour différents éléments ainsi que les coefficients de séparation en fonction de la température et de la surface choisies. Il apparaît qu'en choisissant convenablement la surface ionisante on peut obtenir une très bonne séparation chimique entre les alcalins et leurs voisins.

En fait, si les potentiels d'ionisation sont très bien connus les travaux de sortie le sont beaucoup moins bien et ils dépendent très fortement

de l'état des surfaces. Aussi les calculs n'ont qu'une valeur indicative et si l'ionisation des gaz rares est exclue nous devons être très prudents en particulier dans le cas de la séparation du caesium et du baryum. Il était donc nécessaire d'effectuer une expérience pour éclaircir ce point.

b) Détermination expérimentale de la contamination du caesium par le baryum.

Après séparation dans le spectromètre de masse à une masse donnée, ces deux éléments ne peuvent être distingués que par l'observation d'un rayonnement nucléaire caractéristique. Pour cela nous avons utilisé l'installation de spectrométrie nucléaire en ligne construite par Amarel (4).

Pour détecter une contamination de Ba, il était nécessaire de trouver un isotope du baryum "protégé" c'est-à-dire qui ne puisse être formé par filiation radioactive au moins pendant la durée de l'expérience et de période convenable. Nous avons choisi  $^{137m}\text{Ba}$  (2,55 mn,  $\gamma$  662 keV) qui est doublement protégé ( $^{137}\text{Cs}$ , 30 ans ;  $^{137}\text{La}$ ,  $6 \cdot 10^4$  ans). Il restait une difficulté car nous ne connaissons pas la section efficace de formation de  $^{137m}\text{Ba}$  dans la fission de l'uranium par des protons de 150 MeV. Cependant nous connaissons celle de  $^{135m}\text{Ba}$  qui présente le même état de spin ( $11/2^-$ ). La valeur mesurée par Kjelberg et Pappas (6) à 170 MeV est de 6,8 mb, très voisine de la section efficace totale de  $^{135}\text{Ba}$  évaluée d'après la courbe de distribution de charge donnée par Pappas et Hagebø (7). Nous avons supposé pour nos calculs que le  $^{137m}\text{Ba}$  représentait 50% de la section efficace totale de  $^{137}\text{Ba}$  évaluée de la même façon.

Nous avons effectivement détecté une très faible quantité de  $^{137m}\text{Ba}$  correspondant à un rendement du spectromètre de masse pour le baryum égal à  $3 \cdot 10^{-4}$  de celui pour le caesium.

Compte tenu des hypothèses cette valeur ne peut donner qu'un ordre de grandeur, mais elle est assez faible pour nous permettre de dire que notre sélectivité chimique en faveur des alcalins est très bonne. Cependant cette seule expérience ne nous permet pas de savoir si cette sélectivité provient d'un faible rendement d'ionisation, d'une diffusion très lente laissant le temps au  $^{137m}\text{Ba}$  de décroître en grande partie dans la cible, ou d'une combinaison de ces deux effets. En fait, nous verrons plus loin que la diffusion des alcalino-terreux est très lente et intervient dans le résultat précédent.

## 2) Diffusion.

### a) Principe de la mesure du "temps de diffusion".

On se place au sommet d'un pic correspondant à un isotope dont la période est longue par rapport au temps pendant lequel on mesure la diffusion. Au moment du passage d'un faisceau de protons à travers la cible on déclenche un multiéchelle qui enregistre le courant ionique en fonction du temps. On répète cette opération pendant le nombre de cycles nécessaires pour obtenir une bonne définition de la courbe, chaque cycle étant additionné aux précédents.

La figure 6 montre des courbes de diffusion typiques pour les K, Rb, Cs ainsi que des courbes de lithium et sodium mesurées par Mme Thibault<sup>(8)</sup>.

Ces courbes peuvent être analysées en une somme d'exponentielles par une méthode de moindres carrés (programme "Frantic", P.C. Rogers rapport NYO 2303, adapté par Mme Thibault).

Ceci nous permet de définir, par analogie avec les décroissances radioactives, des périodes de diffusion. Ces différentes périodes n'ont pas de sens physique précis, car nous ne connaissons pas la répartition des produits de réaction nucléaire à l'intérieur des plaquettes de graphite et par ailleurs, il existe des effets de surface qui peuvent jouer un rôle important dans le cas de notre cible. Par contre elles sont très utiles pour la comparaison des différentes courbes de diffusion entre elles et pour le calcul des corrections à apporter aux mesures des rapports isotopiques.

Le tableau 3 montre des résultats d'analyses pour des isotopes de potassium, rubidium et caesium avec le pourcentage du nombre total des atomes diffusant pour chaque "mode".

En fait, il existe des modes de diffusion plus longs qui sont très difficiles à mesurer car ils correspondent à des courants ioniques très faibles. Nous n'en tiendrons pas compte car ils sont éliminés par notre méthode de mesure comme nous le verrons plus loin.

### b) Discrimination de diffusion

Afin d'essayer de mettre en évidence des différences éventuelles de vitesse de diffusion entre les isotopes d'un même élément, nous avons comparé les courbes obtenues pour le plus grand écart de masse possible. Cependant cet écart est relativement limité car une bonne mesure de la diffusion ne peut être

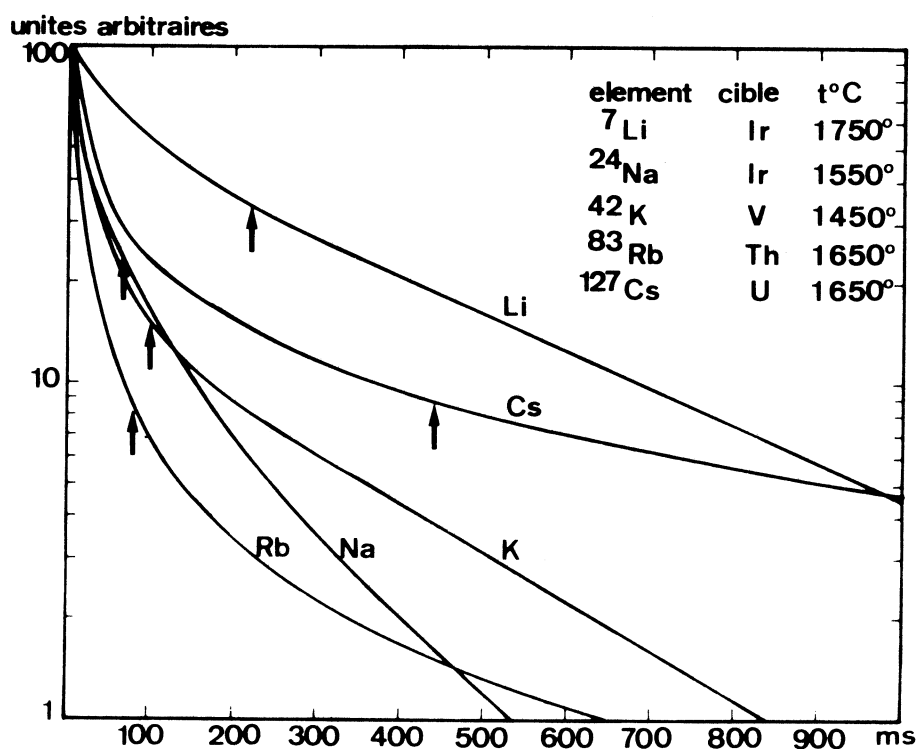


Fig. 6 - Courbes de diffusion pour le lithium, le sodium, le potassium, le rubidium et le caesium. Pour chaque élément la flèche indique le temps nécessaire pour extraire de la cible la moitié des produits formés.

Tableau 3 - Résultats d'analyses de courbes de diffusion.

Pour chaque "mode" nous avons indiqué la période et le pourcentage du nombre total d'atomes formés qui y correspond.

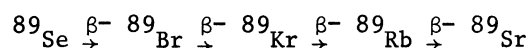
K (1650°C)		Rb (1800°C)		Cs (1800°C)	
ms	%	ms	%	ms	%
5,8	6,3	7,2	12,3	7,7	2,0
32	16,9	21	12,1	57	7,6
178	26,2	78	19,2	330	24,0
1360	50,6	331	20,0	2560	66,4
		2164	36,4		

effectuée que sur un isotope ayant à la fois une section efficace importante et une période radioactive longue par rapport à la vitesse de diffusion. Les meilleures mesures que nous possédons portent sur  $^{89}\text{Rb}$  et  $^{83}\text{Rb}$  dans la fission de l'uranium par des protons de 24 GeV. Ces mesures semblent indiquer une diffusion légèrement plus rapide pour  $^{83}\text{Rb}$  mais l'écart observé reste trop faible pour qu'il soit possible de trancher.

Par ailleurs nous avons vu que nous enregistrons les spectres de masse en effectuant plusieurs balayages au début de la diffusion lorsque le rapport signal sur bruit est favorable. Ceci équivaut à intégrer une part importante de la courbe de diffusion et atténue les écarts. Nous arrivons ainsi, dans le cas précédent, à une discrimination de  $1,8 \pm 1,5\%$ . Dans tout ce qui suit nous négligerons cet effet.

c) Diffusion des gaz rares et des alcalino-terreux.

Nous allons considérer le  $^{89}\text{Rb}$  produit dans la fission thermique. A la masse 89 nous avons la chaîne de décroissance radioactive suivante :



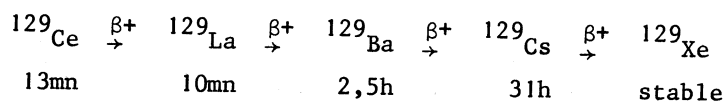
4,5sec    200sec    15mn    50,4jours

où le rendement fractionnel cumulatif de  $^{89}\text{Kr}$  mesuré par Wahl (9) est de  $0,960 \pm 0,004$  ce qui donne pour  $^{89}\text{Rb}$  un rendement fractionnel indépendant inférieur à 0,04.

Après une irradiation de quelques minutes, nous constatons l'existence d'un très fort pic de  $^{89}\text{Rb}$  décroissant approximativement avec la période de  $^{89}\text{Kr}$ . Cette décroissance ne peut être due à un mode de diffusion lent du rubidium car les quantités mises en jeu sont telles qu'il serait nécessaire de supposer un rendement du spectromètre supérieur à 100% si on ne considère que la section efficace indépendante de  $^{89}\text{Rb}$ . Nous sommes donc obligés d'admettre que l'essentiel de  $^{89}\text{Kr}$  dont la section efficace cumulative est environ 25 fois supérieure, décroît dans la cible pour former  $^{89}\text{Rb}$  qui diffuse alors et se trouve détecté. Le même phénomène se produit pour  $^{139}\text{Xe}$  décroissant sur  $^{139}\text{Cs}$ .

Pour les isotopes déficients en neutrons qui sont produits lors des réactions à grande énergie nous avons un phénomène semblable : si l'on considère une cible de tantale et des protons de 24 GeV, nous avons, à la masse 129,

la chaîne suivante :



La section efficace indépendante de  ${}^{129}\text{Cs}$  est environ 40 fois plus faible que la section efficace cumulative de  ${}^{129}\text{Ba}$  et après quelques heures d'irradiation nous retrouvons un pic résiduel du même ordre de grandeur que pour la masse 89 en fission thermique.

Ces exemples pris parmi d'autres nous permettent d'affirmer que la diffusion des gaz rares Kr et Xe et des alcalino-terreux Sr et Ba dans le graphite est au moins trois ordres de grandeur plus lente que celle des alcalins.

### 3) Mesure de sections efficaces indépendantes.

Nous avons vu que le système d'enregistrement mis au point permettait d'effectuer un enregistrement du spectre de masse pendant le temps désiré après chaque irradiation de la cible lorsque le rapport signal sur bruit est le plus favorable. Cependant ce système n'est pas suffisant : en effet, il existe toujours une contamination par des isotopes naturels à certaines masses et il est très intéressant pour la précision des mesures d'éliminer les modes de diffusion longs qui sont difficiles à mesurer et conduisent à des corrections de décroissance radioactives très importantes pour les isotopes courts. Pour cela, si sur un autre sous-groupe du multiéchelle, nous enregistrons le spectre de masse pendant un temps identique juste avant l'irradiation suivante ainsi qu'il est indiqué sur la figure 7, ce spectre contient :

- a) la contamination par les isotopes naturels
- b) la contribution provenant des modes de diffusion longs des alcalins directement produits par les réactions nucléaires
- c) les alcalins résultant de la décroissance radioactive de parents produits par les réactions nucléaires. Dans ce cas : soit  $T_\beta$  la période du parent et  $T$  l'intervalle entre deux irradiations, nous avons trois cas à considérer :
  - 1)  $T_\beta \gg T$ . Le signal produit par la décroissance ne varie pas de façon appréciable pendant les 0,3 sec. qui séparent un balayage sur le sous-groupe 2 et le balayage sur le groupe 1 qui le suit immédiatement, même si la section efficace du corps parent est beaucoup plus importante que celle de l'isotope alcalin considéré. La contribution est donc identique pour les deux spectres.

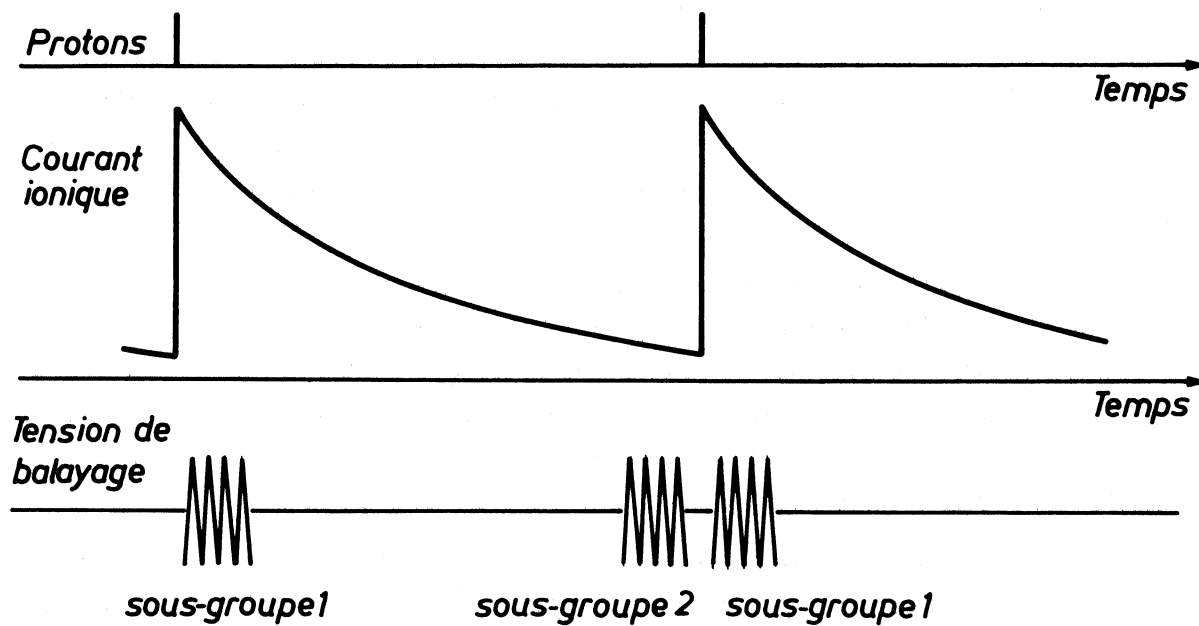


Fig. 7 - Principe du "double balayage" utilisé pour extraire la fraction des alcalins qui diffuse rapidement.

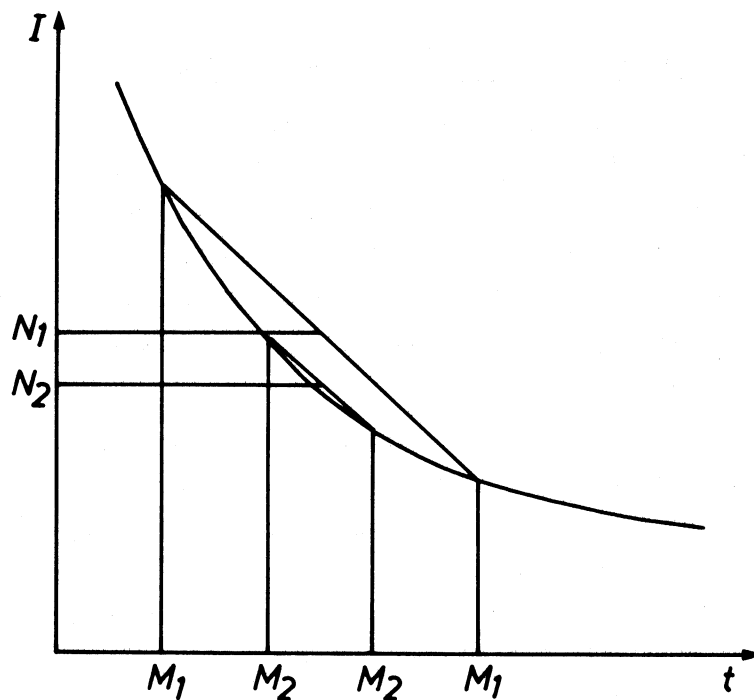


Fig. 8 - Effet de la variation du courant ionique sur deux isotopes de masses  $M_1$  et  $M_2$  formés en quantités égales. Les intensités enregistrées  $N_1$  et  $N_2$  ne sont pas égales et il est nécessaire de corriger cet effet.



2)  $T_\beta \simeq T$ . La section efficace cumulative du parent est alors toujours inférieure ou au plus égale à celle de l'isotope alcalin. Dans ces conditions le calcul de la variation du courant ionique correspondant entre les balayages juste avant et juste après l'irradiation montre que l'effet est négligeable.

3)  $T_\beta < T$ . Une partie du parent peut alors décroître et être détectée pendant le balayage après l'irradiation. En fait, il se trouve que chaque fois que ce cas se présente, la section efficace du parent est plus petite d'au moins un ordre de grandeur et la contribution est de nouveau négligeable. A la masse 95 par exemple la section efficace de  $^{95}\text{Kr}$  ( $T = 0,8$  sec) représente environ 4% de celle de  $^{95}\text{Rb}$  et la contribution est de 0,5% environ.

Ainsi la différence entre les deux spectres obtenus par cette méthode de double balayage correspond uniquement à la contribution des alcalins directement formés dans la réaction nucléaire et diffusant rapidement. Cette contribution est proportionnelle aux sections efficaces indépendantes des différents isotopes d'un élément donné à des corrections près que nous allons discuter.

#### 4) Corrections de diffusion et de décroissance radioactive.

Malgré la grande vitesse de balayage électrique le courant ionique régi par la diffusion ne peut être considéré comme constant au cours d'un cycle de balayage. La figure 8 montre l'effet sur un cycle dans le cas de deux isotopes de masses  $M_1$  et  $M_2$  formés en quantités égales. Nous voyons que si nous effectuons la moyenne sur les deux pics de chaque masse les intensités enregistrées, respectivement  $N_1$  et  $N_2$ , ne sont pas égales. Il est donc nécessaire de corriger cet effet.

Pour cela nous connaissons exactement la position en temps des différents pics au cours des 5 à 10 balayages effectués après chaque irradiation et l'expression du courant ionique qui est de la forme  $I = \sum_i A_i \exp(-\lambda_i t)$ . Nous pouvons donc calculer les facteurs de correction. Ce calcul est effectué pour chaque spectre sur ordinateur à l'aide d'un programme écrit par Mme Thibault. Les corrections ainsi calculées varient entre 0,5 et 5% en fonction de la vitesse de diffusion de l'élément considéré.

Dans le cas d'un isotope radioactif de constante  $\lambda_\beta$  le courant ionique devient :

$$I = \left[ \sum_i A_i \exp(-\lambda_i t) \right] \exp(-\lambda_\beta t)$$

Une variante du programme précédent nous permet de calculer les quantités effectivement détectées en fonction de celles qui l'auraient été pour un isotope stable. Compte tenu de nos conditions d'enregistrement, les pertes sont négligeables pour les isotopes dont la période est supérieure à 5 secondes. Pour  $^{94}\text{Rb}$  ( $T_{1/2} = 2,7$  sec) elles représentent environ 1,5% et pour  $^{97}\text{Rb}$  ( $T_{1/2} = 0,135$  sec) elles représentent environ 30%. Ces corrections sont effectuées pour chaque isotope à vie courte en tenant compte de toutes les conditions de la mesure. Elles sont assez précises pour ne pas introduire d'incertitude supplémentaire importante dans le résultat final.

#### 5) Discrimination due au spectromètre de masse.

Pour les différents isotopes d'un élément donné, l'efficacité du spectromètre varie avec la masse. Ceci donne naissance à une discrimination qui dans notre cas provient essentiellement du multiplicateur d'électrons et du balayage par la haute tension. Nous allons examiner ces deux problèmes.

##### a) Discrimination due au multiplicateur d'électrons

Les multiplicateurs utilisés possèdent 17 dynodes en Cu - Be. Les ions sont recueillis sur la première dynode. A la sortie nous obtenons des impulsions qui sont envoyées directement sur un discriminateur rapide de seuil voisin de 100 mV. Si nous envoyons un faisceau d'ions d'intensité constante sur la première dynode et si nous augmentons progressivement la haute tension appliquée, nous constatons que le taux de comptage augmente d'abord très rapidement puis se stabilise, bien que la hauteur des impulsions continue à croître. Cette évolution est représentée sur la figure 9. Nous travaillons au début du plateau afin de ne pas surcharger inutilement le multiplicateur car nous avons constaté que sa durée de vie était liée en grande partie au nombre total d'électrons fournis. Dans ces conditions, les impulsions ont une largeur de 10 ns et une hauteur moyenne de 500 mV sur une résistance de 75  $\Omega$ . Cela correspond à un gain de  $4 \times 10^8$ . Ce gain élevé peut être conservé pendant plusieurs mois à condition d'augmenter de temps en temps la haute tension appliquée.

Lorsque nous sommes sur le plateau toutes les impulsions produites sont comptées, leur hauteur n'intervenant pas. Si pour les différents isotopes d'un élément, le rendement en électrons secondaires de la première dynode varie, nous avons une discrimination qui dans le cas d'une mesure par intégration, à l'aide d'un électromètre, est égale à cette variation. Par contre, en comptage

d'ions la discrimination ne peut provenir que d'une variation de la proportion des ions ne donnant pas d'impulsion, c'est-à-dire ceux qui ne donnent pas d'électrons secondaires sur la première dynode.

Pour calculer cet effet il est nécessaire de connaître la variation de  $\bar{K}$ , le nombre moyen d'électrons émis par ion incident, en fonction de la masse des isotopes pour un élément donné. Kaminsky <sup>(10)</sup> a effectué une revue des travaux réalisés dans ce domaine. Malheureusement aucune des études ne correspond exactement à notre cas. Nous retiendrons le cas le plus défavorable où la variation de  $K$  est égale à l'écart relatif de masse. Par ailleurs, l'émission des électrons secondaires est régie par la loi de Poisson qui s'écrit :

$$P(K) = \frac{\bar{K}^K \exp(-\bar{K})}{K!}$$

où  $P(K)$  est la probabilité d'émettre  $K$  électrons.

A l'aide d'un spectromètre de masse équipé d'un multiplicateur d'électrons et d'une cage de Faraday escamotable, nous avons mesuré le rendement de détection du multiplicateur. Pour une énergie des ions de 8,5 kV (5 kV d'accélération à la source et 3,5 kV de post-accélération à l'entrée du multiplicateur) nous avons trouvé un rendement de 97% soit 3% de pertes, ce qui conduit à  $\bar{K} = 3,50$ . Cette valeur est en bon accord avec celle trouvée par Dietz <sup>(11)</sup>.

Dans le cas le plus défavorable où une variation de 10% de la masse des isotopes d'un élément entraînerait une variation égale de  $\bar{K}$ , la discrimination en comptage d'ions, dans nos conditions, serait réduite à 1%. Nous négligerons donc cet effet.

#### b) Discrimination due au balayage

Dans un spectromètre de masse l'extraction des ions de la source augmente avec la haute tension appliquée. Aussi lorsque nous effectuons le balayage en modulant la haute tension introduisons-nous une discrimination qui est aggravée par la variation de l'énergie des ions au niveau du multiplicateur (ces deux effets favorisent les isotopes les plus légers). Nous avons pu mesurer cette discrimination en comparant des rapports isotopiques mesurés à l'aide du balayage électrique et du balayage magnétique ne comportant donc que la discrimination très faible donnée par le multiplicateur en comptage d'ions. Nous avons trouvé que l'erreur était proportionnelle à l'écart relatif de masse entre les deux isotopes

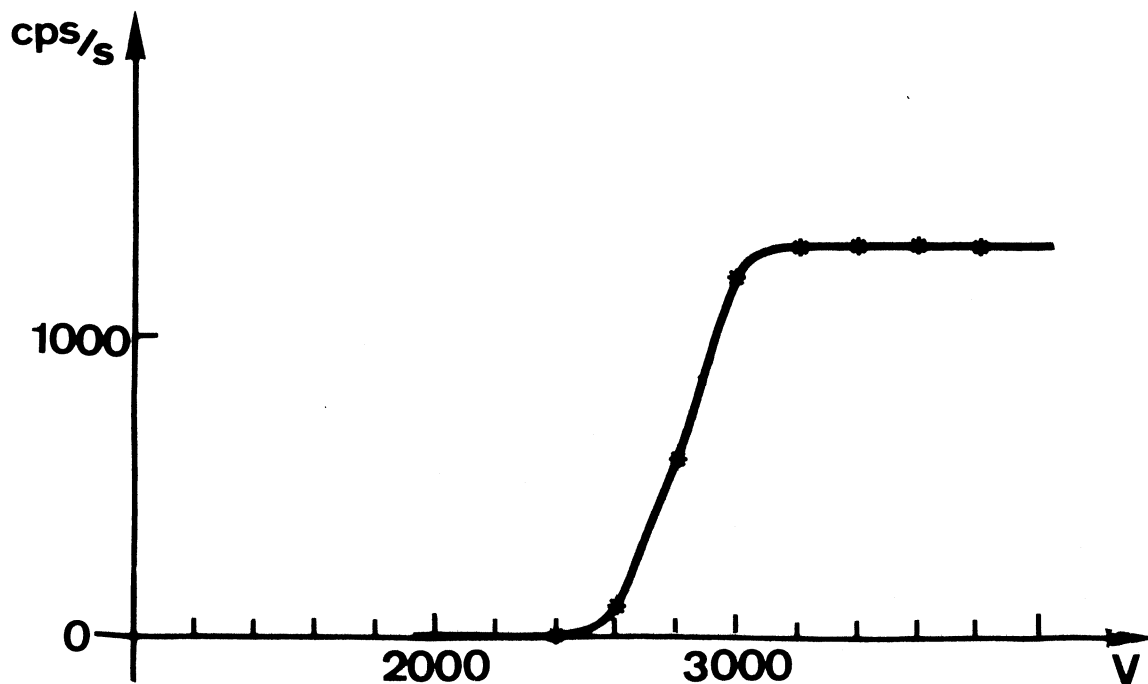


Fig. 9 - Variation du taux de comptage donné par le multiplicateur d'électrons en fonction de la tension qui lui est appliquée.

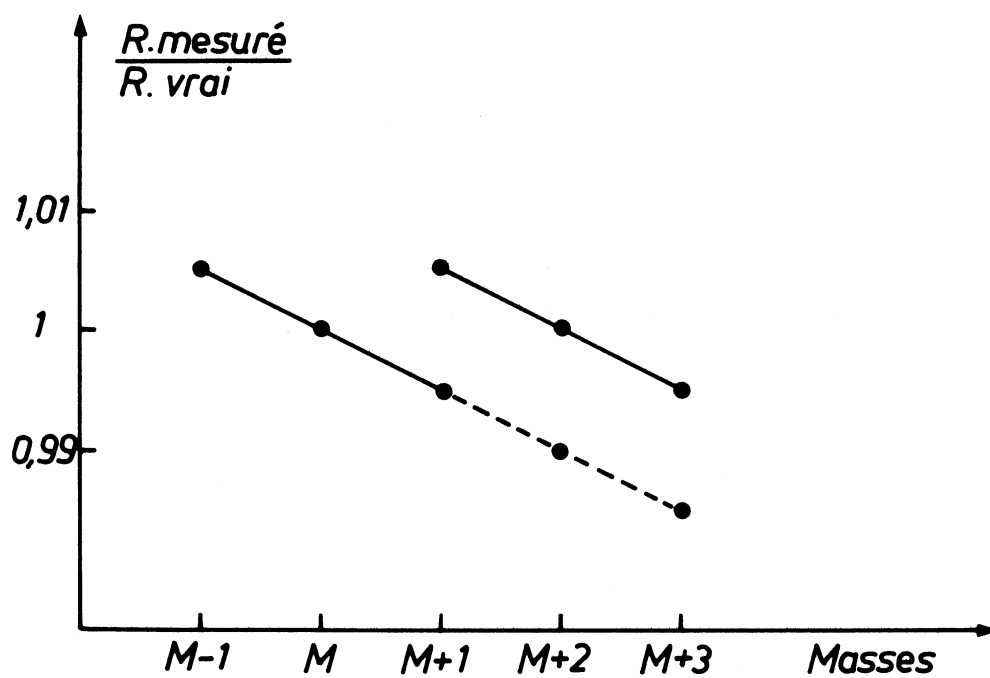


Fig. 10 - Additivité des discriminations isotopiques dues au balayage lorsqu'on effectue la normalisation des spectres de masse partiels sur un isotope commun.

considérés et qu'elle pouvait s'écrire si R est le rapport isotopique :

$$\frac{\Delta R}{R} = (0,43 \pm 0,06) \frac{\Delta M}{M}$$

Cette relation nous permet de corriger les rapports isotopiques pour une plage de balayage donnée. Lors de la normalisation des spectres partiels pour obtenir la distribution complète des isotopes d'un élément, nous avons deux cas à considérer. En effet, compte tenu de la très faible dimension de notre cible et du fait que sa position n'est pas parfaitement définie, il est extrêmement difficile de mesurer avec précision le nombre de particules qui la traversent effectivement. Par contre, il est possible de mesurer le flux total de particules et les deux cas sont les suivants :

1. la position du faisceau est stable au niveau de notre cible : la proportion des particules qui la traversent effectivement est constante et la normalisation des spectres partiels entre eux peut se faire à l'aide du flux intégré de particules correspondant à chacun. Dans ce cas la discrimination de balayage ne s'ajoute pas à chaque étape de normalisation et reste très faible.
2. le faisceau n'est pas stable en position : la normalisation doit se faire sur un isotope commun à deux plages de balayage consécutives. Dans ce cas les erreurs dues à la discrimination s'ajoutent à chaque étape ainsi qu'il est indiqué sur la figure 10 et il est très important d'en tenir compte.

#### 6) Discrimination due aux processus de formation des isotopes étudiés.

Nous avons trois causes d'erreur possibles provenant des processus nucléaires :

- les différences d'énergie de recul entre les isotopes d'un même élément.
- la contribution de l'enveloppe de tantale dans le cas des réactions à haute énergie.
- l'effet des particules secondaires.

Nous allons examiner successivement les trois effets sur un plan général. Les erreurs introduites dans chaque cas particulier seront indiquées au cours de la présentation des résultats.

a) discrimination due aux différences de parcours

Notre méthode repose sur la diffusion très rapide des alcalins dans le graphite. Pour pouvoir être détectés les produits alcalins doivent sortir par recul de la couche mince de cible et être stoppés dans le graphite. Nous aurons une discrimination si la proportion des atomes reculant hors de la cible varie pour les isotopes d'un même élément. Afin de calculer cet effet nous avons besoin de connaître à la fois le spectre d'énergie des produits, leur distribution angulaire et l'épaisseur de la cible. Malheureusement, en général, nous ne connaissons que le parcours moyen mesuré en cible épaisse par radiochimie et l'épaisseur de nos cibles est mal définie. En effet, la méthode de pulvérisation employée en général ne permet pas d'être sûr de l'homogénéité des couches de cible et par ailleurs des mesures de spectres  $\alpha$  nous ont montré qu'une partie importante de l'uranium pénétrait à l'intérieur du graphite (ceci tendrait d'ailleurs à diminuer les pertes par recul, l'uranium étant ainsi réparti dans les micropores du graphite).

Pour calculer la proportion  $\eta$  des produits qui sortent des couches de l'élément cible nous supposons que tous ont un parcours égal au parcours moyen et une distribution isotrope. Dans ce cas si  $R$  est l'épaisseur de recul et  $a$  l'épaisseur de la couche nous avons pour  $R > a$  :

$$\eta = \frac{2R - a}{2R}$$

Cette méthode de calcul est assez sûre pour la fission thermique et les produits riches en neutrons dans la fission à plus haute énergie car les distributions d'énergie sont très étroites.

Pour les produits déficients en neutrons formés à haute énergie la distribution est beaucoup plus large, ce qui pourrait conduire à des erreurs.

Pour éclaircir ce point nous avons utilisé la distribution mesurée par Crespo, Cumming et Poskanzer <sup>(12)</sup> pour le  $^{131}\text{Ba}$  produit dans la fission de l'uranium par des protons de 2,2 GeV. Nous avons ainsi calculé la proportion de  $^{131}\text{Ba}$  sortant de la cible soit à l'aide de la distribution mesurée, soit en prenant le parcours moyen mesuré en cible épaisse à 3 GeV par Friedlander et al. <sup>(13)</sup>. Les résultats ainsi obtenus présentent un écart inférieur à 10% pouvant provenir d'une précision insuffisante dans le spectre d'énergie. Nous admettons donc que la méthode de calcul à partir des parcours moyens est valable pour les

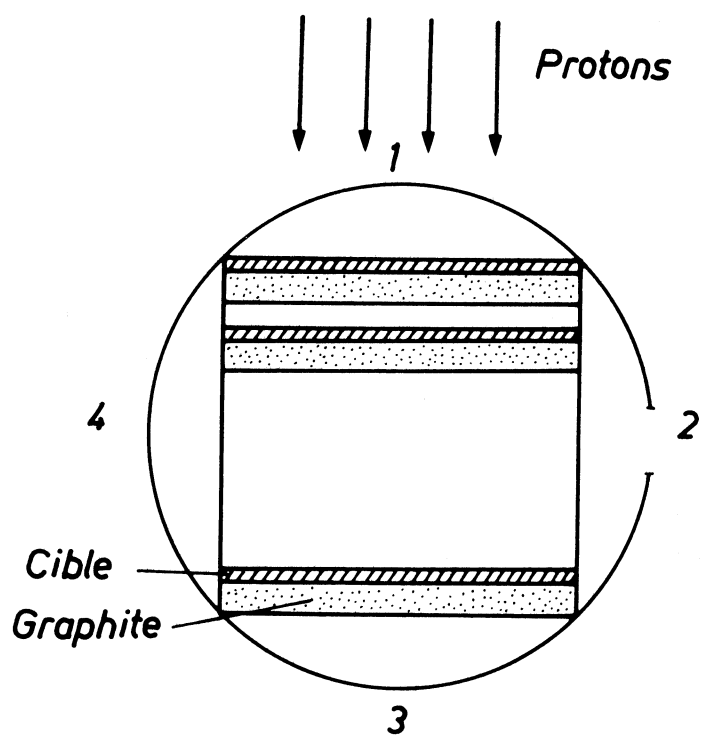


Fig. 11 - Vue en coupe du four contenant la cible. Si le faisceau de protons a des dimensions inférieures à la cible, seuls les reculs provenant des faces 1 et 3 du four donneront une contribution. Si le faisceau de protons est plus grand que la cible ou mal centré, les reculs provenant des faces 2 et 4 interviendront aussi.

produits déficients en neutrons.

b) Contribution des parois du four à haute énergie

A haute énergie les sections efficaces de formation, dans une cible de tantale, des isotopes très déficients en neutrons du rubidium et du caesium et de la plupart des isotopes du potassium sont très voisines de celles dans des cibles d'uranium et de thorium. Nous avons ainsi une contribution provenant des produits formés dans les parois du four en tantale et projetés dans la cible. La figure 11 montre une coupe transversale du four contenant la cible de section carrée. Malheureusement nous ne pouvons faire un calcul exact de cette contribution : en effet si le faisceau de protons est plus petit que la cible, seules interviennent les faces avant et arrière du four. Si le faisceau est plus grand que la cible, nous avons aussi une contribution des faces latérales. En fait, au cours de notre expérience avec des protons de 24 GeV le faisceau avait une taille voisine de celle de la cible et se déplaçait légèrement, si bien que nous devions nous trouver dans une situation intermédiaire.

En supposant un faisceau de protons de densité uniforme et une distribution angulaire isotrope des produits, la contribution de l'une des faces du four est égale à 0,83 fois celle d'une feuille plane. La contribution totale peut donc être comprise entre 0,83 et 1,66 fois l'épaisseur du recul, valeur qui doit être réduite si on tient compte du fait qu'il y a toujours une couche de cible face au tantale et que les atomes de recul en provenance du four qui y sont stoppés en ressortent avec un temps de diffusion très long, ce qui permet de les éliminer par la méthode d'enregistrement utilisée. Ainsi nous adopterons comme contribution du four la quantité produite dans une couche d'épaisseur égale au parcours moyen des produits dans le tantale. La correction à apporter peut être calculée en comparant cette quantité avec ce qui est produit dans la cible.

c) Influences des particules secondaires

Pour les corps ayant un seuil de fission bas, les particules secondaires émises en grand nombre lors des réactions à haute énergie peuvent à leur tour induire de nouvelles fissions à basse énergie augmentant la section efficace apparente des isotopes très riches en neutrons. Friedlander et al. (13) ont mesuré une augmentation de section efficace de 7% pour le  $^{140}\text{Ba}$  produit dans une cible d'uranium de  $100 \text{ mg/cm}^2$  bombardée par des protons de 2,9 GeV, cette augmentation variant linéairement avec l'épaisseur de la cible. En prenant pour



section efficace cumulative du  $^{140}\text{Ba}$  7,9 mb à 3 GeV et 60 mb à très faible énergie (particules secondaires) nous trouvons dans le cas précédent que le nombre de fissions induites par les particules secondaires représente 0,92% du nombre d'interactions à haute énergie. En prenant une répartition isotrope, le parcours moyen de ces particules est égal à trois fois l'épaisseur de la cible, ce qui nous conduit à six particules secondaires par interaction en leur supposant une section efficace de fission de deux barns. Un calcul plus rigoureux devrait tenir compte des particules émises au cours de la cascade initiale ; cependant ces particules étant émises vers l'avant ont un parcours moyen égal à la moitié de l'épaisseur et sont donc six fois moins efficaces que les particules d'évaporation émises isotropiquement. Elles ne peuvent donc intervenir pour une part importante dans le résultat précédent.

Dans le cas de notre cible, en prenant six particules secondaires pour l'uranium, cinq pour le tantale et une pour le carbone et en évaluant les épaisseurs moyennes traversées, nous obtenons une proportion de fission secondaire de 0,4% soit une augmentation de 3% pour les isotopes très riches en neutrons. Dans le cas d'une cible de thorium dont la section efficace de fission à basse énergie est beaucoup plus faible que celle de l'uranium, l'augmentation ne devrait pas dépasser 1%.

Nous admettons que ces résultats sont valables à 24 GeV. Ces valeurs n'étant que des évaluations et comme nous ne connaissons pas la répartition exacte des produits formés nous ne tenterons aucune correction pour cet effet.

#### 7) Bruit de fond et sensibilité aux $\beta$ .

Sur la figure 3 nous avons présenté un spectre de caesium qui montre l'existence, entre les pics, d'un fond continu qui a quatre origines :

- a) Le mouvement propre du multiplicateur d'électrons qui est de l'ordre de 0,5 c/s.
- b) Le bruit produit par des ions de masse différente de celle des ions enregistrés et qui ont rebondi sur les parois de la chambre ou ont été défléchis par un choc sur une molécule du gaz résiduel. Au voisinage d'un pic, pour un écart de masse de 1%, ce bruit représente environ un dixmillième de la hauteur du pic et décroît lentement avec la distance. Les valeurs habituelles sont comprises entre 1 et 20 c/s.

c) Le bruit dû aux rayonnements  $\gamma$

Il existe auprès des accélérateurs une source de bruit très importante provenant des rayonnements nucléaires. Des essais de blindage du multiplicateur nous ont montré que ce bruit provenait essentiellement des rayonnements  $\gamma$  émis soit au cours de la désexcitation des noyaux produits par les réactions nucléaires, soit lors de la capture des neutrons après thermalisation. Au synchrocyclotron d'Orsay, le bruit de fond pour un faisceau de  $5 \cdot 10^{11}$  protons par seconde, est d'environ 2000 c/sec. Compte tenu de la structure du faisceau : un paquet de protons de quelques  $\mu$ s toutes les 2,2 ms, l'interposition d'une porte bloquant le comptage pendant 100  $\mu$ s au moment du passage des protons permet de réduire ce bruit à quelques dizaines de coups par seconde. Dans le cas d'un faisceau de protons pulsé (P.S., C.E.R.N.) il suffit de commencer l'enregistrement environ 5 ms après le passage du faisceau pour que l'essentiel du bruit de fond ait décru. Ces précautions peuvent se révéler insuffisantes pour la recherche d'événements très rares. Nous avons obtenu une diminution de 30% pour le bruit de fond résiduel avec porte, en protégeant le multiplicateur par une couche de FLi absorbant les neutrons thermiques sans rayonnement  $\gamma$ . Une amélioration beaucoup plus importante pourrait être obtenue en piégeant systématiquement les neutrons secondaires. Des essais vont être entrepris dans ce sens.

d) Bruit de fond dû aux décroissances  $\beta$  des ions collectés et mesure des périodes.

Au cours de l'enregistrement des spectres nous accumulons sur la première dynode du multiplicateur des quantités importantes d'isotopes radioactifs qui lors de leur décroissance ou de celle de leurs descendants donnent naissance à un bruit de fond qui peut atteindre parfois plusieurs centaines de coups par seconde. Des mesures d'efficacité nous ont montré que dans le cas de  $^{91}\text{Rb}$  nous comptons 0,25 coup par décroissance radioactive  $\beta$ . Cette valeur semble être un maximum et le rendement est compris entre 10 et 25%.

Cette activité est habituellement peu gênante car elle est répartie sur l'ensemble du spectre. Pour les isotopes les plus courts, grâce à la grande fréquence du balayage, elle apparaît comme un fond constant qui peut être facilement retranché. Cependant pour l'étude des événements très rares il faut éviter de contaminer le multiplicateur par des mesures antérieures sur des isotopes à vie longue ayant une section efficace importante.

Cette sensibilité aux  $\beta$  peut par contre être utilisée pour la mesure des périodes radioactives. En effet, si nous accumulons sur la première dynode du multiplicateur un isotope pur puis si nous stoppons l'arrivée des ions, nous pouvons enregistrer à l'aide d'un multiéchelle la décroissance de l'activité et obtenir ainsi, après plusieurs cycles si nécessaire, une mesure de la période radioactive de l'isotope considéré. Ce système présente des avantages importants car il ne nécessite aucune installation particulière et il est beaucoup moins sensible au bruit de fond qu'un système de détection  $\beta$  par scintillateur, même monté en télescope, tout en ayant un très bon rendement.

Par contre, nous n'avons aucune information sur l'énergie des  $\beta$  et au cours des expériences il s'accumule une activité provenant des descendants radioactifs à périodes plus longues, activité qu'il est impossible d'éliminer et qui peut devenir gênante.

Comme test nous avons mesuré la période du  $^{91}\text{Rb}$  et nous avons obtenu la valeur de  $57,85 \pm 0,45$  sec en très bon accord avec les résultats d'Amarel (4) obtenus par comptage  $\beta$  à l'aide d'un scintillateur plastique.

Nous avons utilisé cette méthode pour la mesure des périodes d'isotopes du rubidium et du caesium déficients en neutrons. Ces résultats seront présentés au chapitre III.

#### 8) Mesure des périodes des isotopes à vie très courte.

Nous avons vu que l'expression du courant ionique en fonction du temps pour un isotope stable ou à vie longue était de la forme  $I = \Sigma A_i \exp(-\lambda_i t)$  tandis que pour un isotope à vie courte il s'écrivait  $I = |\Sigma A_i \exp(-\lambda_i t)| \exp(-\lambda_\beta t)$ .

Le rapport des courants ioniques est donc égal à  $\exp(-\lambda_\beta t)$  à un facteur constant près provenant du rapport des sections efficaces et permet de mesurer la période radioactive de l'isotope considéré. Cette méthode a été utilisée par Mme Thibault (8) pour mesurer les périodes radioactives de  $^{27}\text{Na}$  à  $^{31}\text{Na}$  et de  $^{11}\text{Li}$  ( $T_{1/2} = 9 \pm 0,5$  ms). Elle ne s'applique qu'aux isotopes dont la période est inférieure à une seconde environ, mais dans ce cas présente un meilleur rendement que la méthode précédente. L'ensemble de ces deux méthodes nous a permis de mesurer des périodes radioactives s'étageant sur plus de cinq ordres de grandeur à partir de quelques millisecondes.

### Conclusion

Pour obtenir les distributions à partir des spectres partiels enregistrés, nous devons effectuer les opérations suivantes :

- a) Corrections de diffusion
- b) Corrections de décroissance radioactive pour les isotopes dont la période est inférieure à 5 secondes
- c) Normalisation des différents spectres en corrigeant la discrimination due au spectromètre de masse.

Les erreurs retenues sont les erreurs statistiques dues au comptage et aux normalisations successives. Pour des isotopes de masses voisines, elles reflètent très exactement la précision de la mesure du rapport des sections efficaces. Pour des isotopes de masses très différentes, les erreurs sont un peu plus grandes à cause de l'accumulation des imprécisions des diverses corrections et des discriminations éventuelles de diffusion et de parcours qui ne peuvent être chiffrées exactement.

Dans le chapitre suivant, nous allons présenter les résultats que nous avons obtenus et nous reviendrons plus en détail sur chaque cas particulier.



### C H A P I T R E    I I I

#### RESULTATS EXPERIMENTAUX

##### 1) Fission thermique.

Cette expérience a été réalisée sur un faisceau externe de la pile EL<sub>3</sub> à Saclay. Le flux de neutrons était de  $10^8$  n/cm<sup>2</sup>/sec soit  $6 \cdot 10^7$  n/sec sur notre cible qui contenait environ 20 mg de <sup>235</sup>U. La figure 12 montre les résultats obtenus pour le rubidium et le caesium.

La normalisation a été effectuée à l'aide des sections efficaces suivantes, mesurées par radiochimie, qui nous ont été communiquées par A. Wahl<sup>(14)</sup>. Ces valeurs sont exprimées en nombre d'événements conduisant à l'isotope considéré pour 100 fissions induites.

% de fission		% de fission	
<sup>89</sup> Rb	0,189 $\pm$ 0,019	<sup>139</sup> Cs	1,10 $\pm$ 0,14
<sup>90</sup> Rb	0,777 $\pm$ 0,127	<sup>140</sup> Cs	2,30 $\pm$ 0,21
<sup>91</sup> Rb	2,25 $\pm$ 0,20	<sup>141</sup> Cs	3,08 $\pm$ 0,32
<sup>92</sup> Rb	3,20 $\pm$ 0,54		
<sup>93</sup> Rb	3,17 $\pm$ 0,33		

Pour chacun de ces éléments la normalisation a été effectuée à l'aide de la moyenne pondérée des facteurs de normalisation obtenus pour chaque masse. L'accord obtenu est très bon, excepté à la masse 139 où l'écart entre la

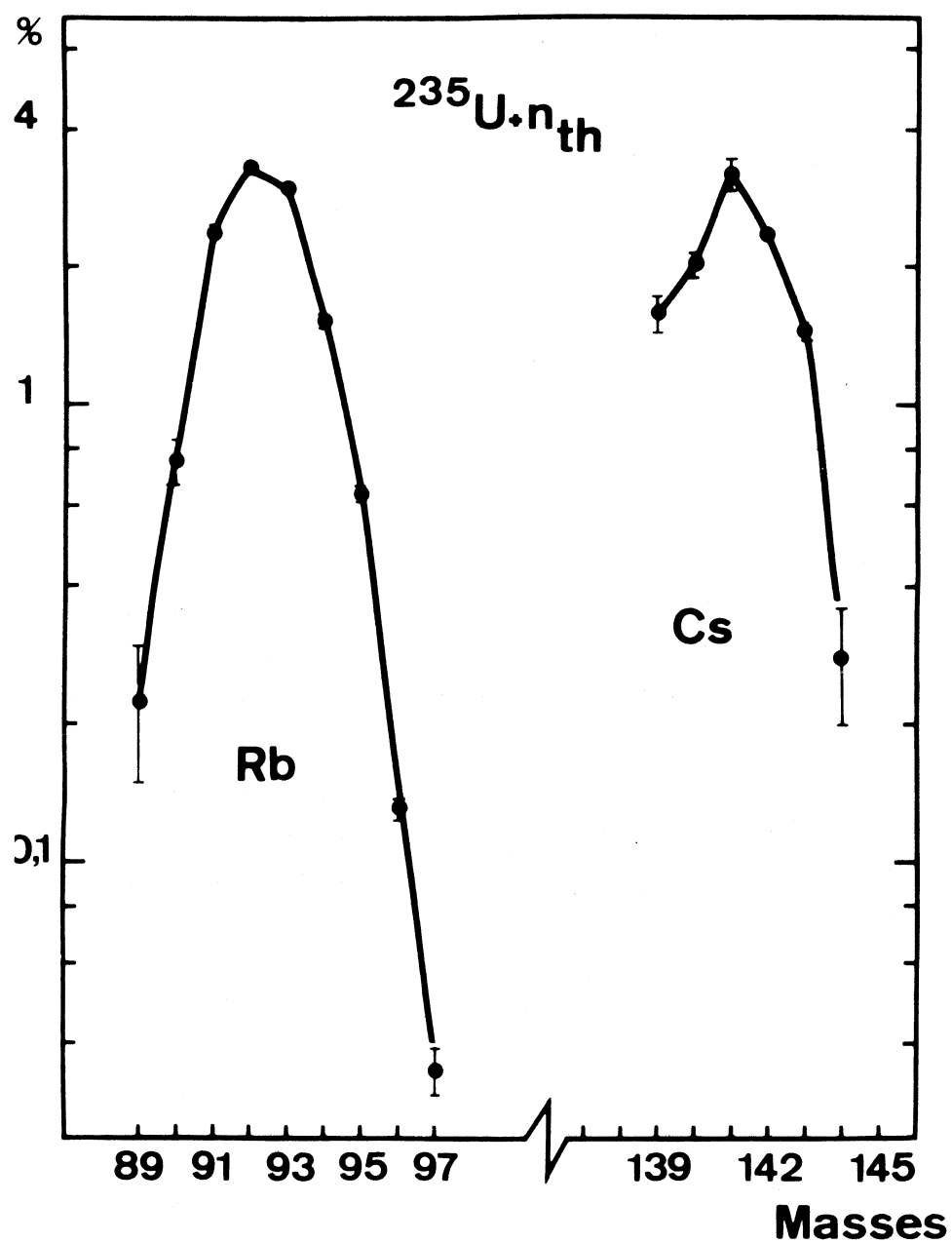


Fig. 12 - Sections efficaces de production des isotopes de rubidium et de caesium dans la fission par neutrons thermiques de  $^{235}\text{U}$ . Pour chaque isotope les résultats sont exprimés en nombre d'atomes formés pour 100 fissions.

mesure par radiochimie et notre valeur obtenue après normalisation atteint deux fois l'erreur. A cause de la faible intensité du flux de neutrons, les mesures ont été limitées du côté de la stabilité par la pollution en strontium et baryum naturels aux masses 88 et 138 respectivement. Par ailleurs, la mauvaise précision aux masses 89 et 139 provient de  $^{89}\text{Kr}$  et  $^{139}\text{Xe}$  qui produisent par décroissance radioactive des pics résiduels très importants, leurs sections efficaces cumulatives étant très grandes par rapport aux sections efficaces indépendantes de  $^{89}\text{Rb}$  et  $^{139}\text{Cs}$ .

La section efficace élémentaire, c'est-à-dire l'intégrale de la distribution isotopique pour l'élément considéré est égale à  $12,0 \pm 0,4\%$  pour le rubidium et à  $11,6 \pm 0,6\%$  pour le caesium d'après la normalisation effectuée.

#### Discrimination due aux différences de parcours des produits

Si le parcours moyen des produits est bien connu à une masse donnée, nous ne connaissons pas la variation en fonction de la masse pour un élément donné. Niday <sup>(15)</sup> et Brown et Oliver <sup>(16)</sup> ont montré que les parcours de  $^{86}\text{Rb}$  et  $^{136}\text{Cs}$  étaient 10% plus faibles que la moyenne pour les chaînes correspondantes, cependant ceci ne nous donne aucune indication sur les variations éventuelles pour les autres isotopes du rubidium et du caesium. Par contre, Hollstein <sup>(17)</sup> a mesuré les parcours en fonction de Z à la masse 139 et a trouvé une diminution de 7% par unité de Z. En supposant cette pente valable entre les masses 139 et 144 pour le caesium, nous pouvons calculer l'évolution des parcours en fonction de la distance par rapport au Z le plus probable et de l'énergie moyenne pour chaque masse.

Nous trouvons ainsi que les parcours diminuent de 5% entre le  $^{144}\text{Cs}$  et le  $^{139}\text{Cs}$ . En supposant que le même calcul puisse être effectué pour le rubidium, la diminution est de 6% du  $^{97}\text{Rb}$  au  $^{89}\text{Rb}$ . En utilisant ces variations nous pouvons calculer les proportions sortant des couches de cibles dont l'épaisseur était de  $1 \text{ mg/cm}^2$ .

- Caesium : Les parcours sont d'environ  $8,5 \text{ mg/cm}^2$  soit 94,1% projetés hors de la cible. Pour une diminution de 5% des parcours la proportion est de 93,8% soit une différence de 0,3%.
- Rubidium : Les parcours sont d'environ  $12 \text{ mg/cm}^2$  soit 95,8% projetés hors de la cible et une diminution de 6% des parcours donne une différence de 0,25%.



Nous voyons que les erreurs introduites sont négligeables.

## 2) Fission à 156 MeV.

Nous avons effectué deux expériences au synchrocyclotron d'Orsay au cours desquelles nous avons mesuré les sections efficaces de production des isotopes de rubidium et de caesium dans des cibles d'uranium et de thorium qui contenaient 36,2 mg d'uranium et 27,9 mg de thorium respectivement. Le flux de protons était de 4 à 5  $10^{11}$  p/s. Les figures 13 et 14 montrent les résultats obtenus.

### Normalisation

#### a) Rubidium dans l'uranium :

Nous avons retenu la section efficace indépendante de  $1,8 \pm 0,2$  mb pour  $^{86}\text{Rb}$ , obtenue par interpolation des valeurs données par Friedlander et al<sup>(13)</sup> à 100 et 200 MeV et par Hagebø, Pappas et Aagaard<sup>(18)</sup> à 170 MeV.

#### b) Caesium dans l'uranium :

Excepté à la masse 136 où la section efficace du caesium avait été mesurée par Hicks et Gilbert<sup>(19)</sup> il n'existait aucune valeur à notre énergie, aussi avons-nous utilisé les fonctions d'excitations données par Friedlander et al<sup>(13)</sup>, Davies et Yaffé<sup>(20)</sup> auxquelles nous avons ajouté les mesures de Pappas et Hagebø<sup>(7)</sup> à 170 MeV.

Nous avons donc retenu les sections efficaces indépendantes suivantes :

$$^{129}\text{Cs} = 0,8 \pm 0,08 \text{ mb}$$

$$^{130}\text{Cs} = 1,8 \pm 0,18 \text{ mb}$$

$$^{131}\text{Cs} = 2,8 \pm 0,28 \text{ mb}$$

$$^{132}\text{Cs} = 5,7 \pm 0,57 \text{ mb}$$

$$^{134}\text{Cs} = 10 \pm 3 \text{ mb}$$

$$^{136}\text{Cs} = 12 \pm 1,2 \text{ mb}$$

Nous avons pris arbitrairement une erreur de 10% excepté à la masse 134 où la proximité du maximum de la fonction d'excitation rend l'évaluation plus difficile. De même que pour la fission thermique la normalisation a été effectuée à l'aide de la moyenne pondérée des facteurs de normalisation obtenus

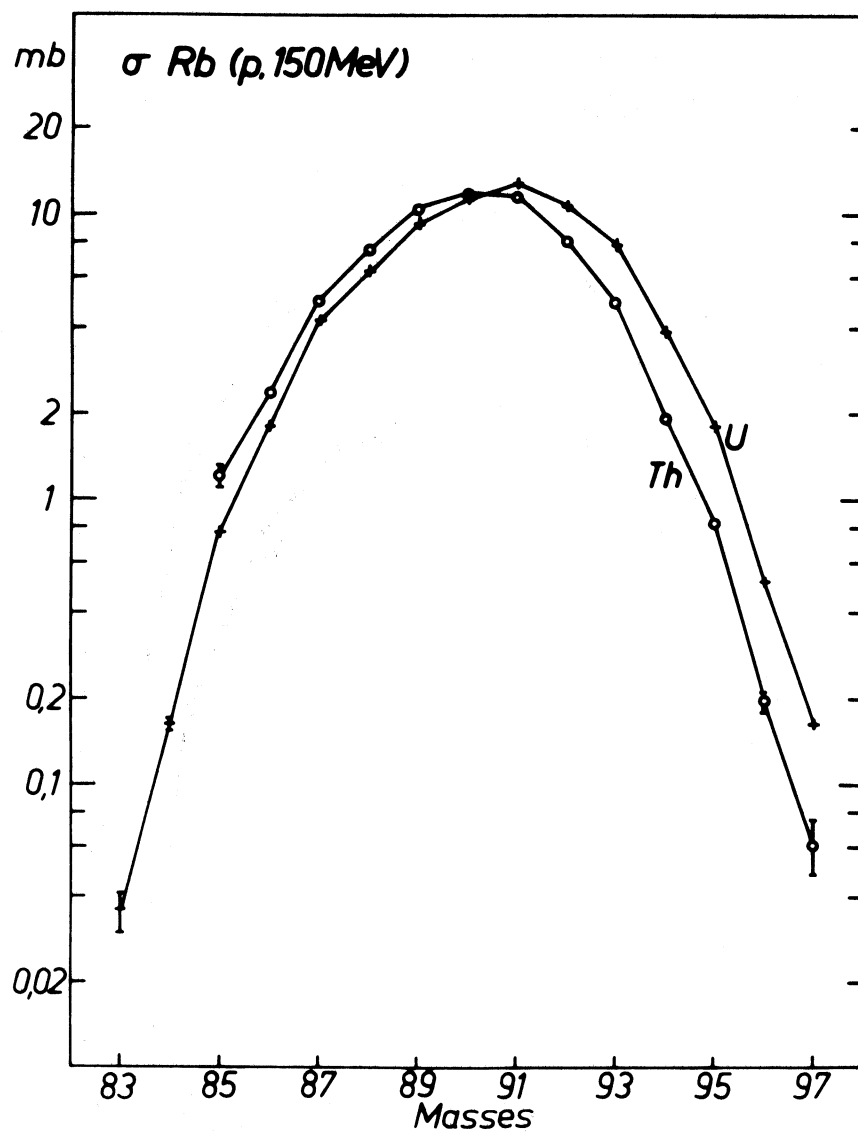


Fig. 13 - Sections efficaces de production des isotopes de rubidium formés dans le bombardement de cibles de thorium et d'uranium par des protons de 156 MeV.

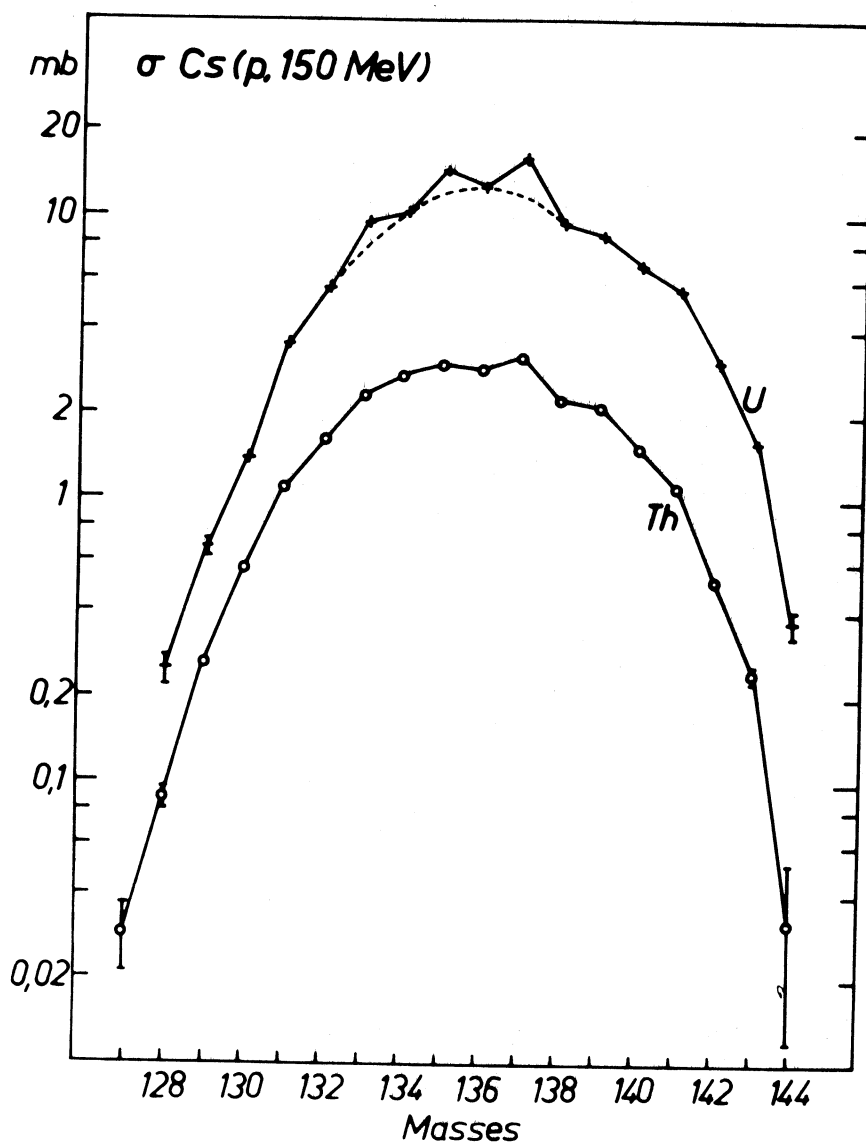


Fig. 14 - Sections efficaces de production des isotopes de caesium formés dans le bombardement de cibles de thorium et d'uranium par des protons de 156 MeV.

pour ces différentes masses. Nous obtenons ainsi un très bon accord entre nos mesures et celles effectuées par radiochimie.

c) Rubidium et caesium dans le thorium.

Ces courbes ont été normalisées à l'aide des sections efficaces suivantes mesurées par B. Erdal (21) :

$$^{86}\text{Rb} = 2,37 \pm 0,42 \text{ mb}$$

$$^{132}\text{Cs} = 1,54 \pm 0,12 \text{ mb}$$

$$^{136}\text{Cs} = 3,06 \pm 0,32 \text{ mb}$$

Les sections efficaces élémentaires de production du rubidium sont respectivement de 71,5 mb et 66 mb dans l'uranium et le thorium, et de 25,2 mb pour le caesium dans le thorium. Pour le caesium dans l'uranium, elle est de 100 mb si l'on exclut la structure aux masses 133, 135 et 137 qui, comme nous le verrons, provient au moins en partie d'un effet instrumental.

Structure dans la distribution des caesium

La distribution des caesium dans l'uranium (figure 14) présente une structure très importante aux masses 135 et 137 et à un degré moindre à la masse 133. Cette structure pose un problème car dans le cas de ces masses le rapport du signal au pic résiduel n'est que de 0,15 environ. Ceci est dû à plusieurs causes.

1. Pollution par les isotopes naturels du baryum de la masse 134 à 138.
2. Afin de maintenir cette pollution à un niveau acceptable, il est nécessaire de diminuer la température du four, ce qui malheureusement diminue aussi la vitesse de diffusion du caesium et par là, le signal.
3. Les  $^{135}\text{Xe}$  et  $^{137}\text{Xe}$  ont des sections efficaces cumulatives très importantes et produisent par décroissance radioactive des pics résiduels très importants. Le même phénomène se produit à un degré moindre aux masses 138 et 139 et à la masse 133 si la durée de l'expérience est suffisante ( $^{133}\text{Xe}$ ,  $T_{1/2}$ , 5,27 Jours).

De cette façon, nous avons des pics résiduels très semblables en intensité aux masses 135, 137 et 138 avec toutefois la différence qu'aux masses 135 et 137 ils étaient constitués essentiellement de caesium tandis qu'à la masse 138, plus de la moitié du pic provenait du baryum naturel. Le problème provient

du fait qu'avec un rapport signal sur pic résiduel de 0,15 une augmentation éventuelle de 3% seulement du pic résiduel pendant l'irradiation produirait une augmentation apparente de 20% pour le signal, ce qui suffirait à expliquer la structure observée.

Pour essayer d'éclaircir ce point, nous avons fait varier les conditions d'irradiation et d'enregistrement pour améliorer le rapport signal sur pic résiduel. Cependant compte tenu du temps d'expérience qui nous était imparti, nous n'avons pu faire varier ce rapport que d'un facteur 2, ce qui était insuffisant pour tirer des conclusions.

Pour éviter ce problème, la mesure des sections efficaces du caesium dans la cible de thorium a été effectuée au début de l'irradiation avant que les pics résiduels n'aient eu le temps de croître. Le fait que la structure soit beaucoup moins apparente que pour l'uranium peut faire penser à un effet instrumental. Cependant la fission du thorium peut se comporter de façon différente de celle de l'uranium et là encore, il n'est pas possible de tirer de conclusions.

Par contre les résultats préliminaires d'une expérience effectuée à 50 MeV au cyclotron de Grenoble confirment l'existence d'un effet instrumental. En effet, nous avons observé une structure beaucoup plus importante qu'à 150 MeV et surtout variable en fonction des conditions expérimentales.

A 150 MeV pour un faisceau de  $5 \cdot 10^{11}$  protons par seconde, la puissance dégagée dans le four est de 0,1 W environ, tandis qu'à 50 MeV où le faisceau atteint  $1,2 \cdot 10^{13}$  protons par seconde, la puissance est de 10 W. Cependant la structure observée ne peut s'expliquer par une augmentation de l'émission des pics résiduels due à un échauffement d'ensemble du four. En effet, à la masse 138, nous ne voyons aucune structure alors que le pic résiduel est composé en grande partie de baryum naturel dont l'émission augmente 3 à 4 fois plus vite que celle du caesium résiduel lorsqu'on augmente la température du four. Une explication éventuelle pourrait être un échauffement plus rapide de la cible, d'où proviennent les pics résiduels de caesium, que des parois du four, d'où provient la majorité du baryum naturel. Cependant le calcul montre que pour les durées d'irradiation utilisées, c'est le phénomène inverse qui se produit du fait de la très grande capacité calorifique du graphite. Il nous faudrait donc supposer que le passage des protons à travers la cible perturbe le réseau cristallin, ce qui permettrait une diffusion plus rapide du caesium.

Pour les distributions de rubidium le problème est beaucoup moins important car les pics résiduels sont beaucoup plus faibles. Ceci provient, d'une part de ce que la pollution par les isotopes naturels du strontium est moins importante que dans le cas du baryum, d'autre part que la diffusion du rubidium est plus rapide que celle du caesium, et enfin, d'une diffusion partielle du krypton. En effet, les pics résiduels aux masses 85,87 et 88 sont plus faibles qu'on ne s'y attendrait en supposant une décroissance totale des krypton correspondants dans la cible. Ces isotopes de krypton ont des périodes radioactives nettement plus longues que celles de  $^{135,137}$  et  $^{138}\text{Xe}$  ; ce qui, associé à une diffusion du krypton probablement plus rapide que celle du xénon, leur permet de diffuser en grande partie hors de la cible avant de décroître sur les rubidium correspondants.

#### Discrimination due aux différences de parcours des produits.

Nous ne possédons pas d'étude détaillée des reculs des produits de fission à 156 MeV, cependant dans une étude des parcours de produits de fission dans l'uranium à 440 MeV Hogan et Sugarman <sup>(22)</sup> ont mesuré à la masse 139 une différence de parcours de 17% entre les noyaux les plus riches et ceux les plus pauvres en neutrons. Cette diminution de parcours pour les produits déficients en neutrons proviendrait de trois effets d'égale importance :

- une plus grande déformation à la scission
- une évaporation de nombreux neutrons
- un effet de la masse du fragment parent sur la division de l'énergie cinétique totale.

Si l'on considère les différents produits à une masse donnée, ce troisième effet peut s'expliquer de la façon suivante :

- un produit riche en neutrons provient d'un fragment qui a évaporé peu de neutrons et possédait donc une masse voisine.

- un produit déficient en neutrons provient au contraire d'un fragment qui a évaporé beaucoup de neutrons et possédait donc une masse plus grande au moment de la scission. Le partage de l'énergie cinétique totale entre les fragments dépendant du rapport des masses, il a donc reçu une énergie cinétique plus faible.

Dans notre cas, nous avons suppression de cet effet car nous travaillons à Z constant si bien que les produits déficients en neutrons ont une

masse beaucoup plus faible que les produits riches et les fragments parents doivent avoir des masses comparables. Par ailleurs les chaînes d'évaporation sont plus courtes car nous disposons d'une énergie plus faible. Nous pouvons ainsi évaluer à 10% au maximum la diminution de parcours pour les isotopes de caesium les plus déficients en neutrons. A défaut de données pour le rubidium, nous admettrons la même variation.

La cible d'uranium naturel utilisée avait une épaisseur de 2,96 mg/cm<sup>2</sup>. En utilisant la différence de parcours que nous venons d'évaluer, nous obtenons une discrimination maximum de 2,25% pour le caesium et de 1,6% pour le rubidium. Nous pouvons penser que le comportement du thorium est très semblable à celui de l'uranium et l'épaisseur de cible étant moindre (2,06 mg/cm<sup>2</sup>), la discrimination doit être plus faible.

#### Contribution des parois du four et des particules secondaires.

L'énergie utilisée ici est trop faible pour produire du rubidium ou du caesium par spallation du tantale. Par contre, nous pouvons produire du rubidium par fission. Cependant la section efficace de fission mesurée par Stephan (2) n'étant que de 1,6 mb, nous négligerons cette contribution. Pour l'influence des particules secondaires, nous ne possédons aucune mesure, mais elles sont certainement moins nombreuses qu'à 3 GeV où nous avons évalué une contribution de 3% dans l'uranium. A 156 MeV la contribution doit être voisine de 1% et nous la négligerons.

#### 3) Fission et spallation à 24 GeV.

Au cours d'une première expérience réalisée au CERN avec des protons de 10 GeV nous avons mesuré les distributions des isotopes de rubidium dans des cibles de tantale, thorium et uranium et celles des caesium dans le tantale et partiellement dans l'uranium. Ces résultats ont été publiés (23). Ces mesures ont été répétées avec beaucoup plus de précision et complétées au cours d'une seconde expérience effectuée à 24 GeV. Les améliorations provenaient d'une part d'une augmentation du rendement du spectromètre et de l'élimination d'une part importante de la pollution par les isotopes naturels et d'autre part d'un faisceau de protons plus intense et mieux focalisé sur notre cible. Lorsque nous avons effectué des mesures à ces deux énergies, comme les distributions obtenues avaient des formes identiques, nous ne présenterons que les résultats à 24 GeV.

Les conditions d'irradiation étaient d'un paquet d'environ  $6 \cdot 10^{11}$  protons, toutes les dix secondes. Nous avons effectué des mesures à l'aide d'une cible de vanadium constituée de couches de carbure d'environ  $1 \text{ mg/cm}^2$ , d'une cible de tantale constituée de feuilles métalliques de  $4,15 \text{ mg/cm}^2$  et des cibles de thorium et d'uranium déjà utilisées à 156 MeV.

Les résultats sont rassemblés sur les figures 15, 16 et 17. Nous allons examiner plus en détail chaque cas.

#### A) Distribution des isotopes du potassium.

Les isotopes du potassium n'étant formés dans les cibles utilisées que par des réactions à haute énergie, l'influence des particules secondaires peut être négligée. Par contre nous pouvons avoir des erreurs introduites par des différences de parcours ou par la contribution des parois du four. Nous examinerons ces deux points après avoir indiqué les normalisations effectuées.

##### Normalisation

#### a) Cible de vanadium

Nous avons utilisé les sections efficaces suivantes, mesurées par Husain et Katcoff <sup>(24)</sup> dans le vanadium à 29 GeV :

$$^{42}\text{K} = 6,9 \pm 0,7 \text{ mb}$$

$$^{43}\text{K} = 3,6 \pm 0,4 \text{ mb}$$

#### b) Cible de tantale et d'uranium

Nous avons admis que les sections efficaces élémentaires du potassium devaient être très voisines de celles du scandium mesurées par Hagebø et Ravn <sup>(25)</sup> et Ravn <sup>(26)</sup> à 18 GeV dans le tantale et l'uranium, soit 17 et 28 mb respectivement.

##### Discrimination due aux différences de parcours des produits

Dans le vanadium, par extrapolation des mesures de Porile et Tanaka <sup>(27)</sup> les parcours peuvent être évaluées à environ  $0,5 \text{ mg/cm}^2$ . Dans le tantale nous avons admis une valeur de  $4 \text{ mg/cm}^2$ . Malheureusement, dans ces deux cas, nous n'avons aucun renseignement sur l'évolution des parcours avec la masse des isotopes, donc sur une discrimination éventuelle. Par contre, pour l'uranium nous possédons les mesures de Ravn <sup>(26)</sup> sur les isotopes de scandium formés à



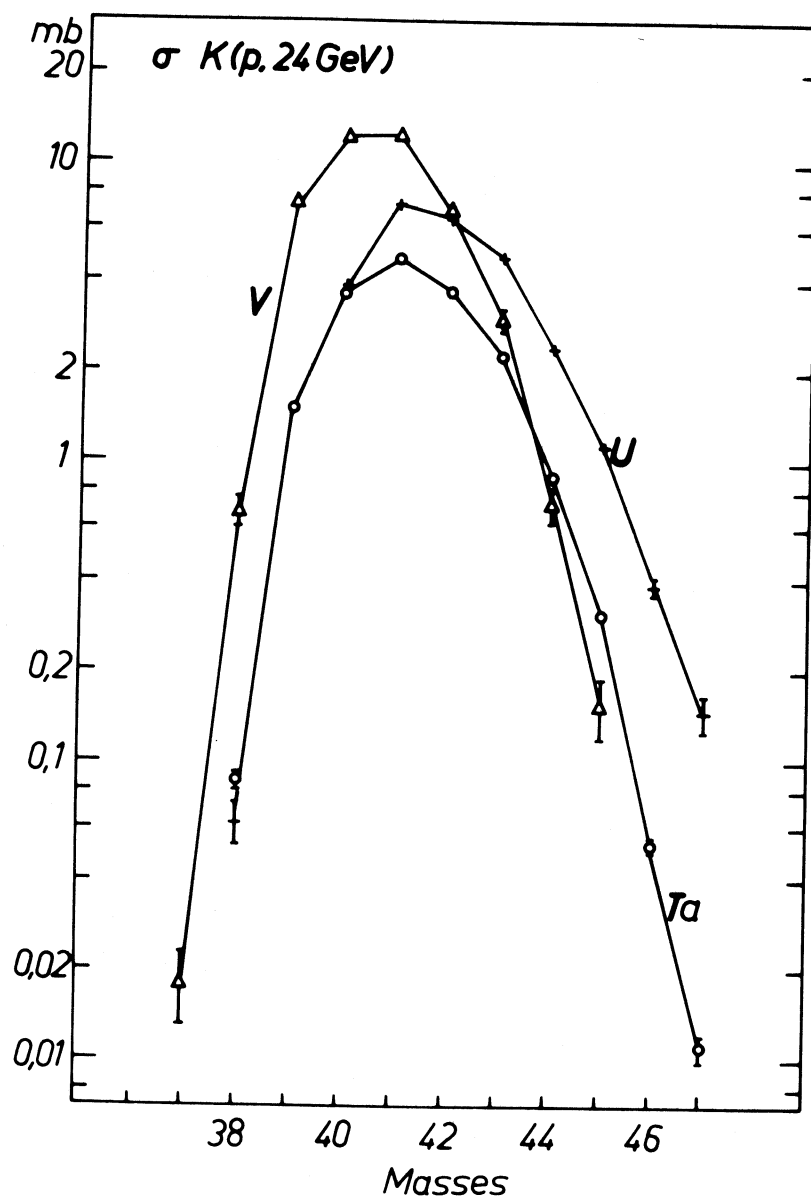


Fig. 15 - Sections efficaces de production des isotopes de potassium formés dans le bombardement de cibles de vanadium, de tantale et d'uranium par des protons de 24 GeV.

18 GeV. Nous admettrons que ces résultats sont valables pour le potassium. Nous avons ainsi des parcours de  $8,8 \text{ mg/cm}^2$  pour les isotopes riches en neutrons et de  $6,4 \text{ mg/cm}^2$  pour les déficients. Ceci, compte tenu de l'épaisseur de la cible, donne une discrimination de 8% pour les isotopes déficients.

#### Contribution des parois du four

Pour le vanadium où les parcours sont de l'ordre de  $0,5 \text{ mg/cm}^2$ , seulement l'épaisseur effective totale de la cible utilisée n'est que de  $5,5 \text{ mg/cm}^2$  environ. La contribution du four en tantale atteint 17% à la masse 42 et 45% à la masse 45. Nous avons effectué la correction pour l'ensemble de la distribution, ce qui nous permet d'obtenir un accord raisonnable avec les mesures de Husain et Katcoff <sup>(24)</sup> que nous avons utilisées pour la normalisation. Cependant pour cette distribution, la précision est très faible car les corrections sont trop importantes et mal connues. Les erreurs indiquées comprennent une incertitude de 20% sur cette correction.

Pour l'uranium où l'épaisseur effective de la cible est d'environ  $50 \text{ mg/cm}^2$ , la contribution des parois du four n'est que de 4% pour les isotopes déficients en neutrons et de moins de 1% pour les plus riches. Cet effet tend à compenser l'erreur introduite par les différences de parcours des produits qui se trouvent ainsi ramenés à 4% environ.

#### B) Distribution des isotopes de rubidium et de caesium

##### Normalisations

##### a) Cible de tantale

Nous avons utilisé la valeur de  $0,27 \text{ mb}$  pour  $^{86}\text{Rb}$  déduite des mesures de Simonoff et Lagarde <sup>(28)</sup> à 10 GeV et de Bächmann <sup>(29)</sup> à 19 GeV pour normaliser la distribution des rubidium. Pour les caesium, il n'existe aucune mesure dans le tantale aussi nous avons utilisé les mesures d'Hagebø et Ravn <sup>(25)</sup> sur l'antimoine et de Rudstam et Sørensen <sup>(30)</sup> sur l'iode, portées en fonction du rapport N/Z. Nous reviendrons sur ce point au cours de la discussion des résultats.

##### b) Cible d'uranium et de thorium

Les normalisations ont été effectuées à l'aide des sections efficaces suivantes mesurées par Friedlander, Franz et Chu <sup>(31)</sup> :

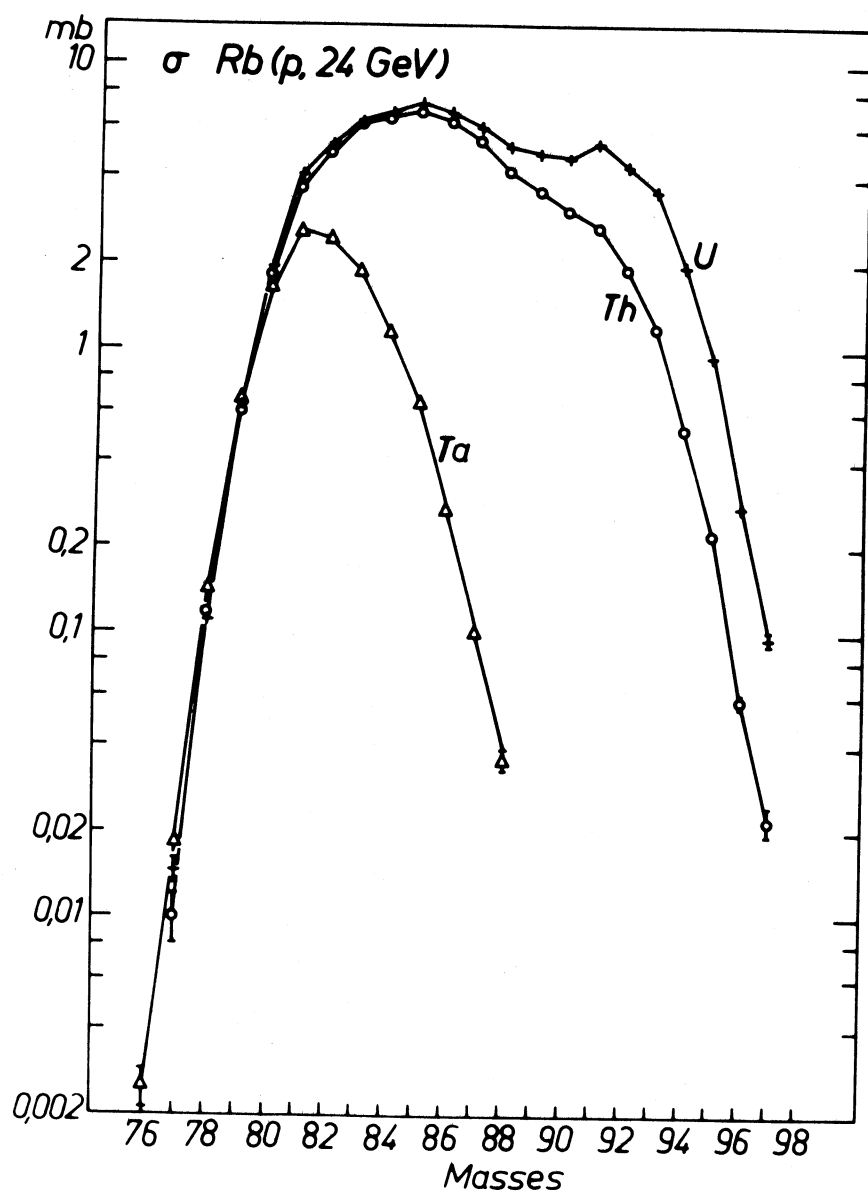


Fig. 16 - Sections efficaces de production des isotopes du rubidium dans des cibles de tantale, de thorium et d'uranium bombardées par des protons de 24 GeV.

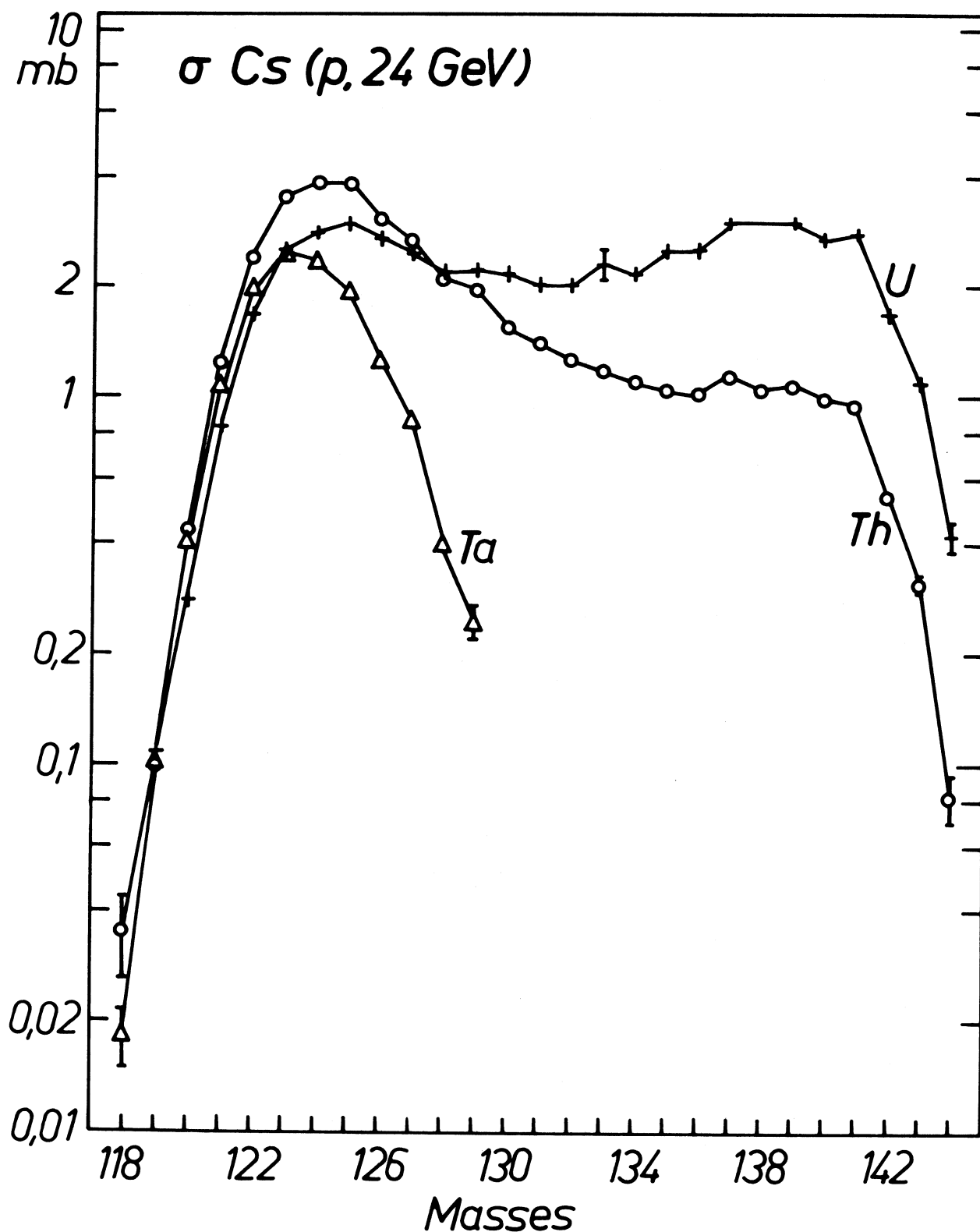


Fig. 17 - Sections efficaces de production des isotopes du caesium dans des cibles de tantale, de thorium et d'uranium bombardées par des protons de 24 GeV.

dans l'uranium :

$$^{132}\text{Cs} = 2,09 \text{ mb}$$

$$^{84}\text{Rb} = 6,63 \text{ mb}$$

$$^{136}\text{Cs} = 2,50 \text{ mb}$$

$$^{86}\text{Rb} = 7,06 \text{ mb}$$

dans le thorium :

$$^{132}\text{Cs} = 1,27 \text{ mb}$$

$$^{84}\text{Rb} = 6,26 \text{ mb}$$

$$^{136}\text{Cs} = 1,03 \text{ mb}$$

$$^{86}\text{Rb} = 6,52 \text{ mb.}$$

Pour ces deux éléments nous avons trois causes d'erreurs possibles à considérer.

#### Discrimination due aux différences de parcours des produits

##### a) Cible de tantale

Elle était constituée de feuilles métalliques de  $4,15 \text{ mg/cm}^2$  soit une épaisseur supérieure aux parcours mesurés par Neidhart, Trabitzsch et Bächmann <sup>(32)</sup> pour les rubidium ( $3 \text{ mg/cm}^2$ ) et pour les caesium ( $1,5 \text{ mg/cm}^2$ ). Cependant, nous ne disposons d'aucune information sur l'évolution des parcours en fonction de la masse pour un élément donné. Du fait de la faible largeur des distributions mesurées, il est probable que les parcours sont voisins pour les différents isotopes d'un même élément si bien que les erreurs introduites restent faibles.

##### b) Cibles d'uranium et de thorium

Les mesures effectuées par Alexander, Baltzinger et Gazdik <sup>(33)</sup>, Brandt <sup>(34)</sup>, Crespo, Cumming et Poskanzer <sup>(12)</sup> montrent que dans la zone habituelle des produits de fission, les parcours des produits formés lors du bombardement d'uranium par des protons de quelques GeV ont des valeurs à peu près constantes pour les produits riches ou peu déficients en neutrons, avec une brutale diminution pour les produits très déficients en neutrons.

Par comparaison avec les résultats de Brandt sur l'iode et le brome, la transition pour les isotopes du caesium se situerait au niveau des masses 126 ou 127 avec des parcours de  $4,5$  et  $8,5 \text{ mg/cm}^2$  respectivement pour les pauvres et les riches en neutrons. Tandis que pour les isotopes du rubidium, les parcours seraient de  $6$  et  $11 \text{ mg/cm}^2$  respectivement avec une transition à la masse 82 ou 83.

Compte tenu des épaisseurs de cible utilisées la discrimination introduite en défaveur des isotopes très déficients en neutrons produits dans l'uranium serait de 18,8% pour le caesium et de 12,8% pour le rubidium. En fait, ces valeurs ne sont qu'indicatives et représentent probablement un maximum à cause du fait que la diffusion de l'uranium à l'intérieur du graphite doit tendre à réduire l'épaisseur effective pour les reculs. Pour le thorium les valeurs correspondantes seraient de 12,3% pour le caesium et de 7,8% pour le rubidium en admettant les mêmes énergies de recul.

#### Contribution des parois du four pour les cibles d'uranium et de thorium.

Compte tenu de l'épaisseur des cibles utilisées et des sections efficaces de production des isotopes déficients en neutrons dans le tantale, la contribution des parois du four pour l'uranium est de 2% pour le caesium et de 3,3% pour le rubidium. Les valeurs correspondantes pour le thorium sont de 2,4% et 4,4%.

La distribution des produits dans le tantale est très voisine de celle des produits présentant des parcours faibles dans l'uranium. La contribution des parois du four a donc tendance à réduire légèrement la discrimination due aux différences de parcours. Le même phénomène se produit probablement pour les isotopes déficients en neutrons formés dans le thorium. Nous aurions ainsi des discriminations maxima de 16,8% pour le caesium et de 9,5% pour le rubidium dans l'uranium et de 9,9% et 3,4% respectivement dans le thorium.

#### Influence des particules secondaires.

Nous avons vu dans le chapitre précédent que la contribution des particules secondaires pour les isotopes de caesium très riches en neutrons pouvait être évaluée à environ 3% pour la cible d'uranium et à 1% pour la cible de thorium. Ces évaluations sont aussi valables pour les isotopes très riches en neutrons du rubidium.

#### 4) Tableaux des valeurs numériques des résultats expérimentaux.

Nous avons rassemblé dans le tableau 4 les périodes de décroissance radioactive d'isotopes de rubidium et de caesium que nous avons mesurées au cours de l'expérience effectuée au CERN. Ces résultats ont été publiés <sup>(35)</sup>.

Ils ont été obtenus par mesure de la décroissance de l'activité déposée sur la première dynode du multiplicateur d'électrons, méthode que nous avons décrite dans le chapitre précédent. Le seul point que nous signalerons est l'existence de deux périodes pour le  $^{122}\text{Cs}$ . Si la période de 21 secondes peut être attribuée certainement au  $^{122}\text{Cs}$ , celle de 267 secondes peut appartenir soit au  $^{122}\text{Cs}$ , soit à un état isomère encore inconnu de  $^{122}\text{Xe}$ .

Par ailleurs, l'ensemble des sections efficaces que nous avons mesurées sont portées dans les tableaux 5, 6, 7 et 8.

Isotope	ce travail Période(sec)	autres mesures Période (sec)
$^{78}\text{Rb}$	393±11	360±60
$^{119}\text{Cs}$	33±8	
$^{120}\text{Cs}$	613±14	
$^{121}\text{Cs}$	125.6±14	120±30
$^{122}\text{Cs}$	a) 21.0±0.7 b) 267±11	0.34 et 230
$^{123}\text{Cs}$	352±3	1.5 et 350
$^{124}\text{Cs}$	26.5±15	34
$^{126}\text{Cs}$	98.6±10	96±12

Tableau 4 - Résultats des mesures de périodes de décroissances radioactives d'isotopes de rubidium et de caesium.

Tableau 5 - Sections efficaces de production des isotopes  
de potassium par des protons de 24 GeV.

Masses	Cible V	Cible Ta	Cible U
	mb	mb	mb
37	0,018 $\pm$ 0,005		
38	0,68 $\pm$ 0,085	0,086 $\pm$ 0,005	0,062 $\pm$ 0,010
39	7,30 $\pm$ 0,28	1,50 $\pm$ 0,04	
40	12,2 $\pm$ 0,4	3,53 $\pm$ 0,055	3,84 $\pm$ 0,17
41	12,4 $\pm$ 0,4	4,72 $\pm$ 0,035	7,12 $\pm$ 0,15
42	6,92 $\pm$ 0,4	3,65 $\pm$ 0,035	6,42 $\pm$ 0,09
43	3,0 $\pm$ 0,25	2,24 $\pm$ 0,03	4,84 $\pm$ 0,11
44	0,72 $\pm$ 0,10	0,89 $\pm$ 0,02	2,40 $\pm$ 0,08
45	0,155 $\pm$ 0,034	0,321 $\pm$ 0,012	1,13 $\pm$ 0,05
46		0,053 $\pm$ 0,003	0,386 $\pm$ 0,026
47		0,011 $\pm$ 0,001	0,147 $\pm$ 0,021



Tableau 6 - Sections efficaces de production des isotopes du rubidium.

Masses	$^{235}\text{U} + n_{\text{th}}$	$\text{Nat}_{\text{U}} + p$ 156 MeV	Th + p 156 MeV	$\text{Nat}_{\text{U}} + p$ 24 GeV	Th + p 24 GeV	Ta + p 24 GeV
	% de fission	mb	mb	mb	mb	mb
76						$0,0025 \pm 0,0004$
77				$0,0144 \pm 0,0015$	$0,0098 \pm 0,0018$	$0,0181 \pm 0,0016$
78				$0,111 \pm 0,004$	$0,116 \pm 0,004$	$0,143 \pm 0,003$
79				$0,636 \pm 0,02$	$0,610 \pm 0,015$	$0,675 \pm 0,012$
80				$1,95 \pm 0,04$	$1,84 \pm 0,03$	$1,65 \pm 0,02$
81				$4,10 \pm 0,06$	$3,64 \pm 0,06$	$2,58 \pm 0,026$
82				$5,12 \pm 0,07$	$4,85 \pm 0,07$	$2,44 \pm 0,016$
83		$0,036 \pm 0,006$		$6,36 \pm 0,05$	$6,08 \pm 0,07$	$1,88 \pm 0,02$
84		$0,162 \pm 0,007$		$6,84 \pm 0,06$	$6,53 \pm 0,07$	$1,14 \pm 0,015$
85		$0,762 \pm 0,022$	$1,20 \pm 0,10$	$7,35 \pm 0,04$	$6,74 \pm 0,05$	$0,65 \pm 0,02$
86		$1,80 \pm 0,018$	$2,37 \pm 0,08$	$6,84 \pm 0,04$	$6,26 \pm 0,04$	$0,27 \pm 0,01$
87		$4,18 \pm 0,036$	$5,02 \pm 0,12$	$6,02 \pm 0,04$	$5,35 \pm 0,04$	$0,101 \pm 0,004$
88		$6,26 \pm 0,07$	$7,50 \pm 0,22$	$5,10 \pm 0,07$	$4,20 \pm 0,04$	$0,036 \pm 0,003$
89	$0,222 \pm 0,073$	$9,18 \pm 0,06$	$10,46 \pm 0,18$	$4,87 \pm 0,04$	$3,60 \pm 0,02$	
90	$0,751 \pm 0,085$	$11,35 \pm 0,2$	$11,90 \pm 0,17$	$4,75 \pm 0,06$	$3,04 \pm 0,02$	
91	$2,37 \pm 0,09$	$12,90 \pm 0,2$	$11,65 \pm 0,15$	$5,15 \pm 0,06$	$2,71 \pm 0,02$	
92	$3,29 \pm 0,075$	$10,80 \pm 0,17$	$8,00 \pm 0,11$	$4,45 \pm 0,07$	$1,92 \pm 0,02$	
93	$2,97 \pm 0,07$	$7,76 \pm 0,12$	$4,90 \pm 0,07$	$3,61 \pm 0,06$	$1,20 \pm 0,014$	
94	$1,52 \pm 0,05$	$3,86 \pm 0,07$	$1,91 \pm 0,04$	$1,98 \pm 0,04$	$0,533 \pm 0,012$	
95	$0,639 \pm 0,025$	$1,80 \pm 0,04$	$0,817 \pm 0,03$	$0,975 \pm 0,02$	$0,226 \pm 0,006$	
96	$0,131 \pm 0,007$	$0,515 \pm 0,017$	$0,195 \pm 0,014$	$0,282 \pm 0,007$	$0,059 \pm 0,003$	
97	$0,035 \pm 0,004$	$0,162 \pm 0,010$	$0,061 \pm 0,014$	$0,097 \pm 0,004$	$0,022 \pm 0,0025$	

Tableau 7 - Sections efficaces de production des isotopes du caesium.

Masses	$^{235}\text{U} + n_{\text{th}}$	$\text{Nat}_\text{U} + p \text{ 156 MeV}$	$\text{Th} + p \text{ 156 MeV}$	$\text{Nat}_\text{U} + p \text{ 24 GeV}$	$\text{Th} + p \text{ 24 GeV}$	$\text{Ta} + p \text{ 24 GeV}$
	% de fission	mb	mb	mb	mb	mb
118					$0,035 \pm 0,009$	$0,0182 \pm 0,0033$
119				$0,108 \pm 0,011$	$0,100 \pm 0,011$	$0,105 \pm 0,005$
120				$0,281 \pm 0,014$	$0,429 \pm 0,018$	$0,404 \pm 0,014$
121				$0,83 \pm 0,023$	$1,23 \pm 0,035$	$1,08 \pm 0,023$
122				$1,68 \pm 0,023$	$2,40 \pm 0,05$	$1,96 \pm 0,036$
123				$2,49 \pm 0,03$	$3,50 \pm 0,06$	$2,50 \pm 0,026$
124				$2,83 \pm 0,03$	$3,85 \pm 0,04$	$2,37 \pm 0,023$
125				$2,99 \pm 0,02$	$3,79 \pm 0,05$	$1,95 \pm 0,03$
126				$2,72 \pm 0,03$	$3,07 \pm 0,04$	$1,25 \pm 0,015$
127		$0,036 \pm 0,030$	$0,029 \pm 0,008$	$2,48 \pm 0,03$	$2,67 \pm 0,06$	$0,875 \pm 0,023$
128		$0,253 \pm 0,030$	$0,088 \pm 0,008$	$2,19 \pm 0,03$	$2,09 \pm 0,07$	$0,391 \pm 0,013$
129		$0,674 \pm 0,05$	$0,262 \pm 0,010$	$2,23 \pm 0,07$	$1,98 \pm 0,08$	$0,243 \pm 0,028$
130		$1,38 \pm 0,06$	$0,557 \pm 0,013$	$2,17 \pm 0,08$	$1,55 \pm 0,05$	
131		$3,51 \pm 0,06$	$1,08 \pm 0,015$	$2,01 \pm 0,05$	$1,40 \pm 0,04$	
132		$5,48 \pm 0,012$	$1,63 \pm 0,03$	$2,03 \pm 0,08$	$1,27 \pm 0,03$	
133		$(9,52 \pm 0,17)^*$	$2,32 \pm 0,04$	$2,31 \pm 0,23$	$1,18 \pm 0,02$	
134		$10,24 \pm 0,16$	$2,68 \pm 0,04$	$2,16 \pm 0,08$	$1,10 \pm 0,02$	
135		$(14,6 \pm 0,20)^*$	$2,94 \pm 0,025$	$2,50 \pm 0,10$	$1,05 \pm 0,03$	
136		$12,7 \pm 0,16$	$2,86 \pm 0,03$	$2,53 \pm 0,09$	$1,03 \pm 0,02$	
137		$(16,3 \pm 0,20)^*$	$(3,14 \pm 0,05)^*$	$3,00 \pm 0,11$	$1,16 \pm 0,04$	
138		$9,77 \pm 0,25$	$2,25 \pm 0,045$		$1,05 \pm 0,05$	
139	$1,59 \pm 0,15$	$8,59 \pm 0,12$	$2,11 \pm 0,025$	$2,97 \pm 0,06$	$1,08 \pm 0,04$	
140	$2,04 \pm 0,12$	$6,71 \pm 0,17$	$1,51 \pm 0,04$	$2,71 \pm 0,06$	$0,99 \pm 0,05$	
141	$3,21 \pm 0,08$	$5,49 \pm 0,15$	$1,11 \pm 0,03$	$2,76 \pm 0,05$	$0,96 \pm 0,05$	
142	$2,38 \pm 0,07$	$3,05 \pm 0,08$	$0,515 \pm 0,020$	$1,70 \pm 0,04$	$0,54 \pm 0,03$	
143	$1,45 \pm 0,06$	$1,60 \pm 0,05$	$0,246 \pm 0,013$	$1,10 \pm 0,03$	$0,312 \pm 0,018$	
144	$0,28 \pm 0,08$	$0,37 \pm 0,04$	$0,032 \pm 0,020$	$0,42 \pm 0,04$	$0,082 \pm 0,013$	

\* Nous avons indiqué entre parenthèses les valeurs perturbées par l'effet instrumental que nous avons signalé pour les caesium produits par fission à 156 MeV.

Tableau 8

Sections efficaces élémentaires à 24 GeV.

Nous avons joint à nos résultats ceux obtenus par Mme Thibault <sup>(8)</sup> pour les sodium.

	cible	V	Ta	Th	U
Elément					
Na			22,0	36,8	45,0
K		43,4	17,0		28,0
Rb			11,6	59,6	77
Cs			13,2	36,6	54,2

## C H A P I T R E    I V

### *DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX*

#### 1) Fission par neutrons thermiques de $^{235}\text{U}$ .

Notre méthode de mesure des sections efficaces de produits alcalins nous permet d'obtenir des renseignements nouveaux sur la fission par neutrons thermiques de  $^{235}\text{U}$ , en effet nos résultats apportent les premières distributions isotopiques complètes de sections efficaces indépendantes mesurées dans ce domaine.

De plus notre méthode présente un intérêt particulier dans le cas de la fission par neutrons thermiques de l'uranium ( $Z = 92$ ) car le rubidium ( $Z = 37$ ) et le caesium ( $Z = 55$ ) ainsi formés sont des produits complémentaires, l'émission de particules chargées étant un phénomène très rare. Nous verrons plus loin que cette remarque permet d'obtenir une mesure très précise du nombre moyen de neutrons produits dans ce mode de fission et de déduire un renseignement important pour le phénomène de fission.

Les sections efficaces élémentaires de ces deux éléments complémentaires doivent être égales. En effectuant des normalisations de façon indépendante, nous avons trouvé (en % de fission)  $12,0 \pm 0,4$  pour le rubidium et  $11,6 \pm 0,6$  pour le caesium. On peut donc considérer que les normalisations ont été effectuées de façon satisfaisante.

#### A - Distributions isotopiques et distribution de charge

Les très nombreuses études effectuées sur la fission thermique de  $^{235}\text{U}$  ont montré qu'à une masse donnée la distribution des produits en fonction de Z pouvait être représentée par une courbe gaussienne. Cette courbe peut être caractérisée par son centre  $Z_p$  et sa largeur à mi-hauteur.

Si maintenant nous considérons une distribution isotopique, c'est-à-dire à Z constant, elle pourra aussi être représentée par une courbe gaussienne si les trois conditions suivantes sont remplies dans l'intervalle de masse considéré :

1.  $Z_p$  variant linéairement avec la masse ;
2. Largeur constante des distributions correspondant à chaque masse ;
3. Production constante en fonction de la masse. Dans le cas contraire, il est possible d'utiliser les rendements fractionnels si la courbe de masse est connue.

D'après Wahl et al <sup>(36)</sup> qui ont rassemblé tous les résultats expérimentaux sur la fission thermique de  $^{235}\text{U}$ , les 2 premières conditions sont remplies et, en particulier, l'ensemble des résultats peut être représenté par une gaussienne de largeur à mi-hauteur  $1,50 \pm 0,12$  unités de Z. La troisième condition a été remplie en utilisant les rendements fractionnels car dans la zone de masse des rubidium et caesium, le rendement en masse ne peut être considéré comme constant. Nous pouvons alors à l'aide d'un ordinateur chercher, par une méthode de moindres carrés, la courbe gaussienne qui représente le mieux les résultats expérimentaux. Nous avons ainsi obtenu deux courbes en très bon accord avec l'expérience et caractérisées par les largeurs à mi-hauteur suivantes, en unité de masse :

$$\text{Rb} : 3,60 \pm 0,07$$

$$\text{Cs} : 3,57 \pm 0,07$$

ces largeurs sont égales et correspondent à une largeur de  $1,40 \pm 0,03$  unités de charge. Cette valeur est plus faible que celle indiquée par Wahl et al <sup>(36)</sup> comme moyenne de l'ensemble des résultats expérimentaux connus précédemment mais reste cependant à l'intérieur de l'erreur indiquée.

Les résultats précédents ont été obtenus en utilisant les masses 89 à 97 pour le rubidium et 137 à 144 pour le caesium. Si nous essayons

maintenant d'inclure les rendements mesurés par Mc Hugh (37) pour  $^{86}\text{Rb}$  d'une part, et  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{136}\text{Cs}$  d'autre part, les largeurs calculées sont beaucoup plus faibles et surtout l'accord entre les courbes calculées et les résultats expérimentaux est moins bon : ces trois isotopes ont des rendements beaucoup trop faibles : d'un facteur 10 pour  $^{86}\text{Rb}$  et  $^{134}\text{Cs}$  et d'un facteur 3 pour  $^{136}\text{Cs}$ . cet effet pourrait être dû aux couches fermées de 50 et 82 neutrons ( $^{87}\text{Rb}$  et  $^{137}\text{Cs}$ ) qui diminueraient l'évaporation des neutrons et produiraient ainsi un déplacement de  $Z_p$ .

Cependant il faut rappeler le caractère purement empirique de la dépendance gaussienne de la distribution de charge dans la fission, il est possible que cette représentation ne soit pas valable pour des rendements aussi faibles que ceux de  $^{86}\text{Rb}$  et  $^{134}\text{Cs}$  car très peu de mesures existent à ce niveau. Pour vérifier ce point il serait intéressant de mesurer les rendements de  $^{98}\text{Rb}$  et  $^{99}\text{Rb}$ . Cette mesure serait possible à condition de disposer d'un flux de neutrons d'environ  $10^{10}$  n/cm<sup>2</sup>/sec et d'augmenter la quantité d'uranium contenu dans notre cible.

#### B - Neutrons émis dans la fission.

Nous désignerons par  $A_s$  le nombre de masse des produits après évaporation des neutrons (ceux que nous séparons dans le spectromètre) et par  $A_p$  celui des fragments avant évaporation des neutrons.

Si nous désignons maintenant par  $\bar{A}_s$  la masse moyenne des produits pour une valeur donnée de  $Z$ , définie comme le centre de gravité de la distribution isotopique, nous avons :

$$\text{Rb} : \bar{A}_s = 92,32 \pm 0,04$$

$$\text{Cs} : \bar{A}_s = 141,03 \pm 0,07$$

Les rubidium et caesium étant complémentaires dans la fission de l'uranium, nous pouvons calculer directement  $\bar{\nu}_t$  le nombre total moyen de neutrons émis par ce couple particulier de produits

$$\bar{\nu}_t = 236 - (92,32 + 141,03) = 2,65 \pm 0,08$$

Ce nombre est en très bon accord avec les résultats de mesures physiques (38)(39) ou de la méthode de Terrell (40). Cependant il donne une information nouvelle : en effet, la résolution des méthodes précédentes n'est que de

plusieurs unités de masse et elles ne permettent pas de distinguer entre les différents éléments. Les valeurs indiquées sont donc des moyennes sur plusieurs unités de masse et de charge. Le fait que pour une division de charge particulière la valeur trouvée soit égale à la valeur moyenne indique qu'au moins dans la zone de masse considérée  $\bar{\nu}_t$  ne dépend pas du Z. Ceci n'avait pu être montré, jusqu'à présent, dans la fission de  $^{235}\text{U}$ .

Ce résultat est identique à celui trouvé par Nifenecker, Frehaut et Soleilhac <sup>(41)</sup> dans la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$ . Dans cette expérience, l'identification en Z des produits était assurée par la mesure des rayons X émis par les fragments en coïncidence avec les neutrons.

Si nous pouvons déduire  $\bar{\nu}_t$  directement de nos mesures, par contre, nous ne connaissons pas le nombre moyen de neutrons émis soit par le rubidium, soit par le caesium. Or, ces nombres sont nécessaires si nous voulons connaître la masse moyenne  $\bar{A}_p$  des fragments à la scission pour déterminer comment la charge nucléaire se divise. Wahl et al <sup>(36)</sup> ont calculé, à partir des mesures physiques de Milton et Fraser <sup>(42)</sup>, Apalin et al <sup>(38)</sup> et Maslin et al <sup>(39)</sup>, le nombre de neutrons émis en fonction de la masse des produits. Si nous utilisons leurs valeurs correspondant au maximum des distributions du rubidium et du caesium soit  $1,43 \pm 0,1$  et  $1,21 \pm 0,12$  respectivement nous pouvons obtenir les masses primaires. Soit  $Z_{\text{UCD}}$  la charge nucléaire correspondant à ces masses en supposant que la charge du noyau fissionnant se divise proportionnellement à la masse des fragments nous pouvons calculer l'écart entre le Z réel et  $Z_{\text{UCD}}$ . Les résultats sont rassemblés dans le tableau suivant :

Elément	$^{37}\text{Rb}$	$^{55}\text{Cs}$
$\bar{A}_s$	$92,32 \pm 0,04$	$141,03 \pm 0,07$
$\bar{\nu}$	$1,43 \pm 0,1$	$1,21 \pm 0,12$
$\bar{A}_p = \bar{A}_s + \bar{\nu}$	$93,75 \pm 0,11$	$142,24 \pm 0,14$
$Z_{\text{UCD}} = \frac{92}{236} \bar{A}_p$	$36,544 \pm 0,042$	$55,445 \pm 0,055$
$Z - Z_{\text{UCD}}$	$+ (0,456 \pm 0,042)$	$-(0,445 \pm 0,055)$

La conservation de la charge implique qu'en valeur absolue  $Z - Z_{UCD}$  doit être égal pour des fragments complémentaires, ce qui est vérifié dans notre cas.

La valeur moyenne est  $Z - Z_{UCD} = 0,452 \pm 0,033$  en bon accord avec les mesures effectuées par radiochimie aux masses 92 et 93 par Norris et Wahl <sup>(43)</sup> et à la masse 141 par Wahl, Ferguson, Nethaway, Troutner et Wolfsberg <sup>(44)</sup> et les mesures de la charge primaire la plus probable effectuées par des méthodes physiques.

#### C - Structure en fonction de la charge des produits.

Dans la fission thermique de  $^{235}\text{U}$  la courbe du rendement des produits en fonction de la masse est connue avec une bonne précision. Par ailleurs, en utilisant l'ensemble des résultats expérimentaux sur les rendements d'isotopes particuliers, Wahl et al <sup>(36)</sup> ont pu déterminer une valeur moyenne de la largeur de la distribution de charge ainsi qu'une loi de variation de  $Z_p$ . Ceci excluant les produits dont le rendement peut être modifié par des effets de structure atomique (couches fermées). Ces données leur ont permis de calculer les rendements "normaux" de tous les produits de fission, c'est-à-dire en ne supposant aucune structure autre que celle de la courbe de masse.

Il est possible ainsi de calculer les rendements élémentaires "normaux" de tous les produits de fission. Ces résultats ainsi que les rendements élémentaires expérimentaux connus sont portés sur la figure 18 tirée de l'article de Wahl et al <sup>(36)</sup>. Cette figure montre clairement que les éléments de  $Z$  pairs sont favorisés tandis que les éléments de  $Z$  impairs sont défavorisés. Cet effet est particulièrement évident pour les sections efficaces élémentaires des rubidium et caesium que nous avons mesurées.

Comme en fission thermique l'émission de particules chargées est un phénomène très rare ; cet effet pair-impair montre que la scission se produit de préférence en 2 fragments de  $Z$  pairs. Un effet semblable devrait se produire pour les neutrons et pourrait être vu directement sur les distributions isotopiques. Cependant aucune structure n'apparaît sur les distributions de rubidium et de caesium à l'exception peut-être du  $^{137}\text{Cs}$  correspondant à la couche de 82 neutrons. En fait, si une telle structure existe au moment de la scission, elle peut être annulée par l'évaporation des neutrons.



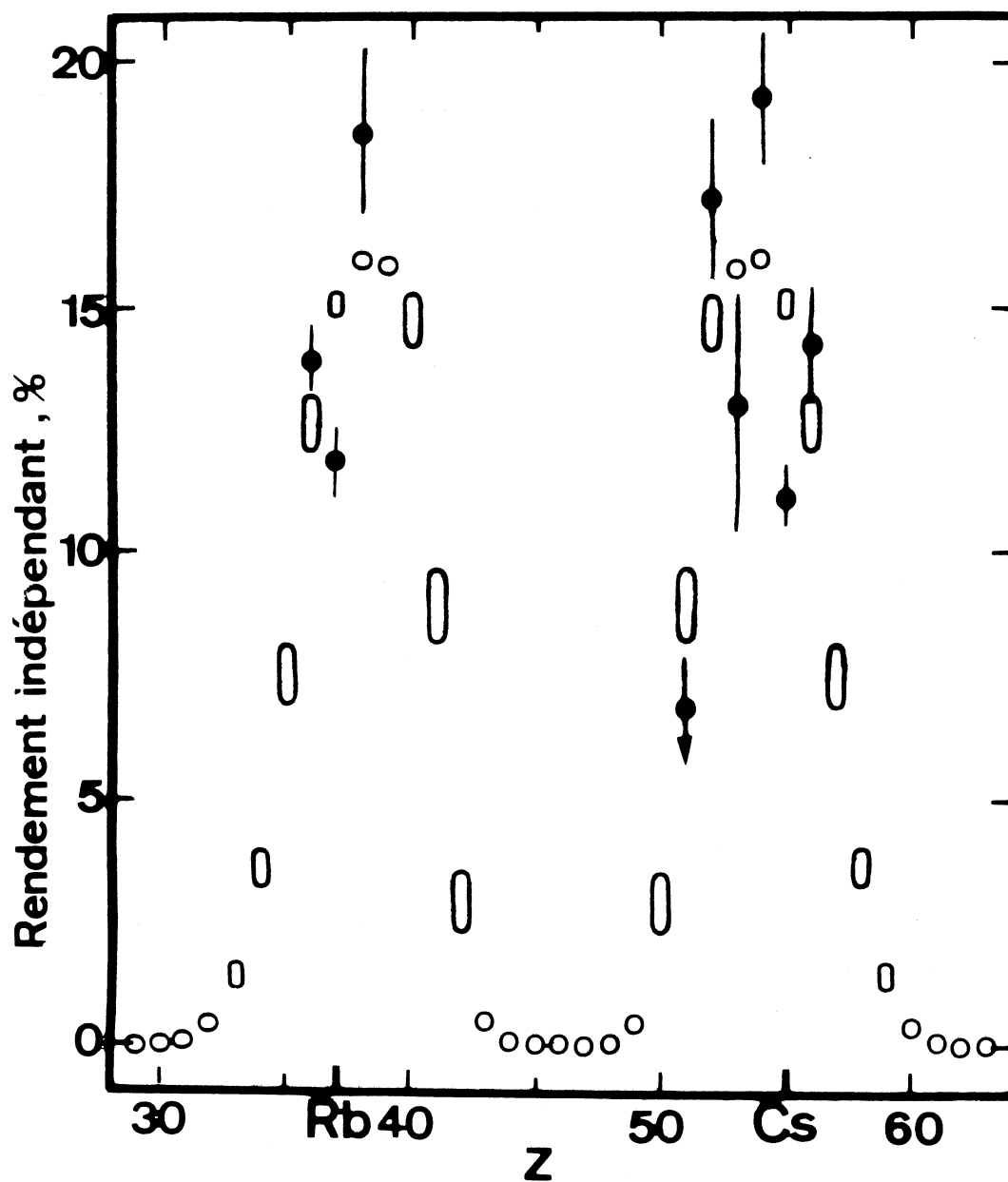


Fig. 18 - Sections efficaces élémentaires dans la fission par neutrons thermiques de  $^{235}\text{U}$

- Valeurs "normales" calculées par Wahl et al (36)
- Valeurs expérimentales

## 2) Fission par protons de 156 MeV.

La fission par protons de moyenne ou haute énergie est un phénomène beaucoup plus complexe que la fission thermique.

A la place d'un noyau fissionnant unique, d'énergie définie, nous avons en effet un grand nombre de noyaux différents produits par l'interaction avec les protons, chacun de ces noyaux ayant de plus un spectre d'énergie d'excitation. Ainsi les phénomènes observés sont des moyennes sur un grand nombre de cas différents.

Etant donné la complexité de ces phénomènes, on peut penser que les progrès dans la compréhension viendront d'un raffinement et d'une complexité plus grands des calculs théoriques. Il est évident toutefois qu'à ces calculs raffinés devront correspondre des résultats expérimentaux de plus en plus précis et détaillés. S'il est vrai que de nombreux paramètres sont nécessaires pour une bonne description de ce phénomène, les sections efficaces de production sont une donnée fondamentale pour la statique de ces réactions. A cet égard, les données que nous présentons pour deux éléments rubidium et caesium sont sans conteste plus précises et surtout plus complètes que tout ce qui avait pu être fait auparavant. Par un calcul simple nous arrivons à rendre compte de façon quantitative des résultats obtenus pour les isotopes de caesium. Il nous paraît évident que le jour où des résultats analogues aux nôtres seront disponibles pour plusieurs autres éléments, il sera possible de cerner de beaucoup plus près le mécanisme de ces phénomènes.

### A - Distributions isotopiques et distributions de charge

Nous allons tout d'abord, en employant les distributions de charge, comparer nos résultats à ceux qui ont été obtenus pour des éléments voisins.

De même qu'en fission thermique il n'est pas possible de passer directement des distributions isotopiques aux distributions de charge qui sont utilisées habituellement pour exprimer les résultats expérimentaux et nous avons les trois mêmes corrections ou hypothèses à faire. Pour cela nous avons effectué les corrections suivantes en utilisant les résultats de Pappas et Hagebø <sup>(7)</sup> dans la fission de l'uranium par des protons de 170 MeV :

- 1- Nous avons admis que la distribution de masse mesurée par ces auteurs à 170 MeV était assez voisine de celle de 156 MeV pour nous permettre de calculer les rendements fractionnels des isotopes du rubidium et du caesium.
- 2- Nous avons utilisé leur courbe de la variation de  $N/Z_p$ , en fonction de la masse des produits, courbe donnant le rapport du nombre de neutrons au nombre de protons pour la charge la plus probable. Cette courbe peut être recalculée pour tenir compte de la différence d'énergie entre 170 et 156 MeV et nous permet d'obtenir  $Z_p$  pour chaque masse.
- 3- Nous supposons que la largeur de la distribution de charge est constante dans la zone de masse couverte soit par le rubidium soit par le caesium.

Nous pouvons maintenant pour chacun de ces éléments porter les rendements fractionnels en fonction de  $Z - Z_p$ , distance entre le  $Z$  de l'isotope et le  $Z$  le plus probable à la masse considérée. Les résultats sont portés sur les figures 19 et 20 avec les courbes gaussiennes calculées. Les largeurs à mi-hauteur calculées sont de 2,1 et 3,0 unités de  $Z$  pour le rubidium et le caesium respectivement en bon accord avec Pappas et Hagebö <sup>(7)</sup> qui indiquent 2,2 et 2,8 unités de  $Z$ . Cependant les courbes calculées ne donnent pas une bonne représentation des résultats expérimentaux, les différences entre les points correspondants et ceux calculés étant souvent très supérieures aux erreurs. Cela signifie que la représentation habituelle de la distribution de charge par une courbe gaussienne n'est qu'une première approximation qui se révèle insuffisante lorsqu'on dispose de mesures précises.

Un accord bien meilleur peut en fait être obtenu en utilisant 2 courbes gaussiennes se recouvrant partiellement. Dans ce cas une gaussienne pourrait correspondre aux produits de la fission à haute énergie et l'autre à ceux de la fission à basse énergie. Cependant on voit mal quel sens physique précis attribuer à ces deux courbes alors qu'il existe un spectre continu d'énergies d'excitation. Nous avons donc renoncé à poursuivre plus loin dans cette voie, ces deux courbes étant par ailleurs assez difficiles à déterminer de façon univoque.

Dans le cas du thorium nous ne pouvons effectuer le même travail car nous n'avons aucun renseignement sur la distribution des masses des produits ni sur la variation de  $N/Z_p$ . Cependant nous pouvons remarquer que la forme des courbes est identique avec un décalage de 0,6 unité de masse pour les

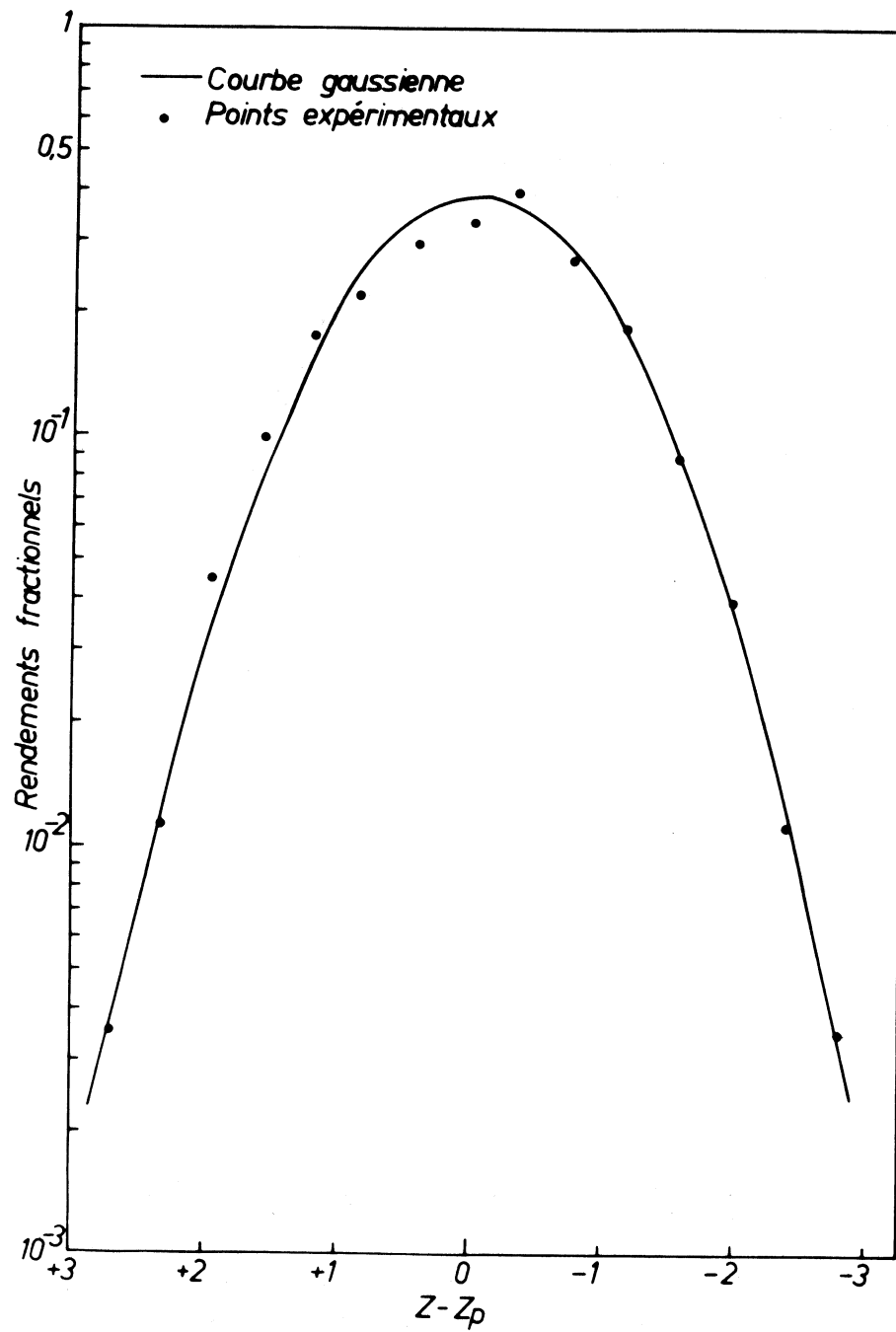


Fig. 19 - Rendements fractionnels des isotopes du rubidium formés dans la fission de  $^{238}\text{U}$  induite par des protons de 156 MeV.

- Valeurs expérimentales portées en fonction de  $Z - Z_p$
- Courbe gaussienne calculée

On remarquera le mauvais accord au voisinage du sommet.

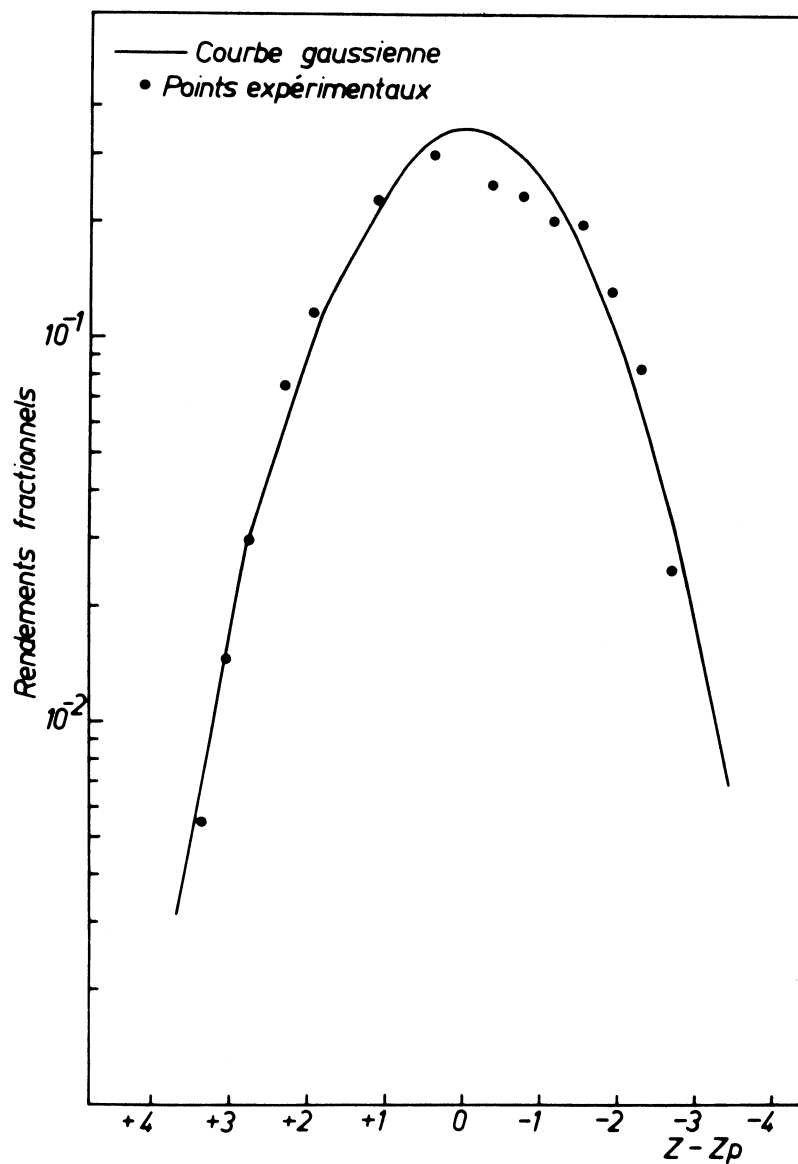


Fig. 20 - Rendements fractionnels des isotopes du caesium formés dans la fission de  $^{238}\text{U}$  induite par des protons de 156 MeV.

• Valeurs expérimentales portées en fonction de  $Z - Z_p$   
— Courbe gaussienne calculée

On remarquera le mauvais accord au voisinage du sommet.

distributions de rubidium et de 0,4 unité de masse pour celles du caesium.

#### B - Calculs sur la fission.

Nous disposons, grâce à nos mesures, d'informations très détaillées et précises sur la fission. Il nous a paru intéressant de voir si ces résultats expérimentaux pouvaient être reproduits par un calcul avec des hypothèses et des paramètres raisonnables. Nous pourrions ainsi apporter des informations nouvelles sur le mécanisme de fission. En effet, il est généralement admis que la fission à haute énergie procède par un mécanisme en 2 étapes. Nous avons d'abord l'interaction directe des protons avec les noyaux cible conduisant à un spectre de noyaux excités. Ensuite dans une étape plus lente, ces noyaux vont se désexciter et certains d'entre eux vont fissionner.

Ainsi la distribution finale des produits de fission, et en particulier celle des caesium que nous avons mesurée, va dépendre à la fois de l'interaction directe et du mécanisme de fission.

Nous allons prendre le cas de la fission à 156 MeV car à cette énergie des calculs de cascade d'interactions directes ont été effectués par la méthode de Monte-Carlo et donnent un bon accord avec les résultats expérimentaux. Nous avons utilisé le programme mis au point à Orsay par Cohen <sup>(45)</sup> utilisant un noyau à bord diffus sans réfraction. Le tableau 9 montre le résultat de 10.000 cascades sur des noyaux de  $^{238}\text{U}$ .

##### a) Principales étapes du calcul.

Nous disposons ainsi d'une distribution de noyaux résiduels  $f(Z, A, E^*)$  dans laquelle nous devons déterminer les noyaux qui vont fissionner. Pour cela nous avons utilisé les rapports des largeurs de fission aux largeurs d'émission de neutrons donnés par Vandenbosch et Huizenga <sup>(46)</sup> en supposant que ces largeurs ne varient pas avec l'énergie d'excitation et que l'énergie nécessaire pour évaporer un neutron était égale à 8 MeV.

Cette énergie est très proche de celle qui est nécessaire pour évaporer un neutron au début des chaînes d'évaporation et correspond au pas de l'histogramme de la distribution d'énergie. Nous pouvons ainsi calculer de façon très simple la distribution  $F(Z, A, E^*)$  des noyaux qui vont fissionner. Par contre cette hypothèse est insuffisante si l'on veut calculer le nombre total de neutrons émis au cours d'une longue chaîne d'évaporation. Dans ce qui suit,

Tableau 9

Résultats du calcul par la méthode de Monte-Carlo de  
10.000 cascades produites par l'interaction de protons de 156 MeV  
sur des noyaux de  $^{238}\text{U}$ .

Cascade	P,N	P,2N	P,3N	P,4N	P,P	P,PN	P,P2N	P,P3N	P,2P	P,2PN
Energie										
4	55	9	0	0	2750	138	8	0	30	1
12	116	28	4	0	139	95	13	0	11	6
20	124	44	3	0	99	66	13	2	10	2
28	102	47	14	4	65	73	20	5	13	6
36	88	62	11	3	76	78	24	2	14	4
44	79	58	16	0	64	88	34	7	6	2
52	90	63	19	5	57	70	21	5	9	7
60	69	83	35	2	60	72	34	5	8	2
68	68	96	30	7	59	72	32	6	11	6
76	78	75	52	5	39	74	39	6	8	2
84	70	96	42	8	41	69	29	2	5	2
92	79	103	65	11	36	80	20	0	5	2
100	59	119	65	8	37	50	23	0	3	0
108	82	143	62	3	36	67	11	0	1	0
116	90	133	52	0	50	48	0	0	0	0
124	132	161	21	0	45	15	0	0	0	0
132	149	188	0	0	33	0	0	0	0	0
140	207	51	0	0	8	0	0	0	0	0
148	387	0	0	0	0	0	0	0	0	0
156	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

- Noyaux composés 373.

nous effectuerons donc un calcul plus exact en tenant compte de l'énergie de liaison de chaque neutron.

Dans une première version, nous avons effectué le calcul de la façon suivante :

### 1. Evaporation des neutrons avant la fission

Une hypothèse très simple est que toute l'énergie d'excitation des noyaux est utilisée pour évaporer des neutrons avant la fission. Ceci ne suppose pas que la compétition fission-évaporation de neutrons ne se produise qu'au dernier stade : en effet, un noyau peut "choisir" une voie qui le conduira à un type donné de fission à n'importe quel stade de l'évaporation, nous supposons seulement que tous les neutrons ont le temps de s'évaporer avant que la séparation en 2 fragments ne soit effective.

Pour une énergie d'excitation donnée le nombre total de neutrons évaporés est calculé en tenant compte des énergies de liaisons et de l'énergie cinétique moyenne.

### 2. Evaporation des neutrons après la fission

Pour un élément donné, il n'existe aucun résultat expérimental sur l'émission des neutrons après fission en fonction de la masse. A défaut, dans cette première étape du calcul, nous avons utilisé la distribution en fonction de la masse obtenue par Wahl et al<sup>(36)</sup> pour la fission par neutrons thermiques de  $^{235}\text{U}$ .

### 3. Distribution de charge

Il existe deux postulats principaux pour rendre compte de la séparation des charges au moment de la fission :

a) Le postulat d'égal déplacement de la charge que nous désignerons par ECD. Il signifie que la distance entre le Z le plus probable  $Z_p$  et le Z correspondant à la stabilité  $Z_A$  pour une masse donnée, est égale pour deux fragments complémentaires. Ce qui peut s'écrire :

$$(Z_p^1 - Z_A^1) = (Z_p^2 - Z_A^2)$$

Ce postulat donne le meilleur accord avec les résultats expérimentaux pour la fission thermique ou à très basse énergie.



b) Le postulat de conservation de la densité de charge que nous désignerons par UCD, suppose que les deux fragments emportent une charge proportionnelle à leur masse, et s'applique à la fission à moyenne et à haute énergie.

Dans notre calcul nous avons supposé que nous avions ECD pour l'énergie d'excitation la plus faible. La différence entre ECD et UCD diminuant ensuite linéairement lorsque l'énergie d'excitation augmente de telle sorte qu'UCD s'applique seul pour des énergies d'excitation supérieures à environ 40 MeV (voir figure 21), la perte de cette droite peut être ajustée afin d'obtenir le meilleur accord.

#### 4. Distribution des isotopes du caesium pour un noyau fissionnant donné à une énergie d'excitation donnée.

Nous avons vu que dans la fission thermique la distribution isotopique des caesium était gaussienne. Nous avons supposé que cela restait vrai à n'importe quelle énergie d'excitation et que la largeur de cette distribution, égale au départ à celle obtenue en fission thermique, ne pouvait qu'être constante ou augmenter avec l'énergie d'excitation.

#### 5. Proportion des noyaux fissionnant donnant du caesium.

Dans la fission thermique de  $^{235}\text{U}$  nous avons mesuré un rendement élémentaire de caesium voisin de 12% alors que la valeur "normale" calculée par Wahl <sup>(36)</sup> est de 15%. Cette différence est due à un effet pair-impair lors de la scission dont nous avons admis qu'il doit s'atténuer et disparaître lorsque l'énergie d'excitation est augmentée. Par ailleurs, ainsi que le remarque Hyde <sup>(47)</sup> la position du pic des fragments lourds varie très peu avec le système fissionnant. Ainsi nous supposerons que toute fission asymétrique donne un rendement élémentaire de 15% pour le caesium.

Dans le cas de la fission symétrique, nous pouvons aussi admettre que le rendement élémentaire du caesium ne dépend pas de l'énergie d'excitation.

En effet, son augmentation se traduira essentiellement par l'évaporation d'un plus grand nombre de neutrons car l'émission de particules chargées est peu probable pour des noyaux aussi lourds. Ainsi la charge du noyau fissionnant reste la même ainsi que très probablement sa répartition entre les différentes valeurs du Z des produits de fission.

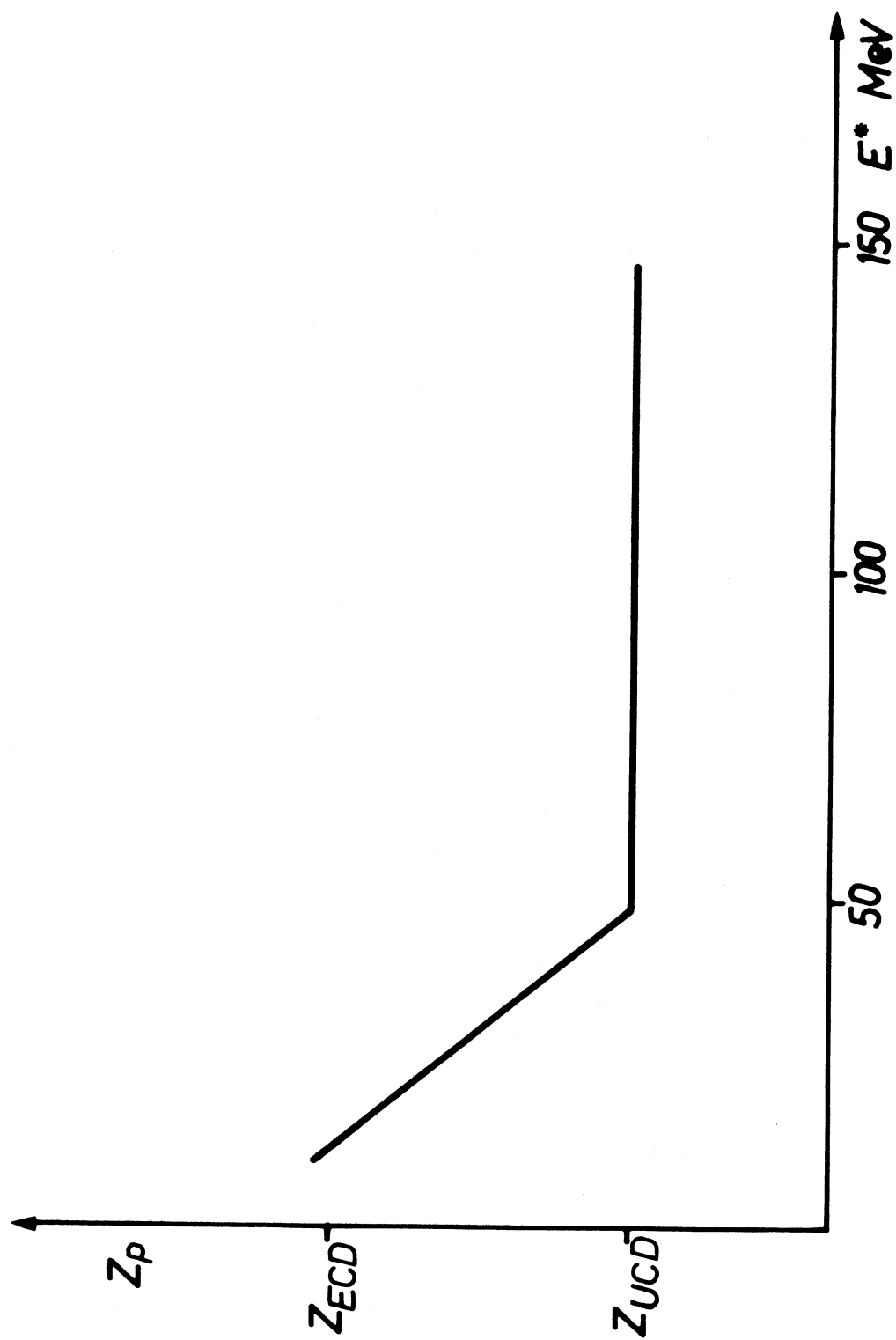


Fig. 21 - Hypothèse utilisée dans le calcul, sur la transition entre ECD et UCD en fonction de l'énergie d'excitation.

Nous pouvons maintenant essayer d'évaluer ce rendement élémentaire en supposant comme Galin et al <sup>(48)</sup> que la partie de la courbe de rendement en masse de l'uranium provenant de la fission symétrique a la même forme que celle obtenue dans la fission du bismuth - nous trouvons ainsi un rendement élémentaire compris entre 2,5 et 3,5%. Cette valeur n'est pas assez précise pour être utilisée dans le calcul aussi l'avons-nous gardée comme paramètre devant être ajusté.

Nous avons enfin à évaluer la proportion de fission symétrique ou asymétrique en fonction de l'énergie d'excitation. Rudstam et Pappas <sup>(49)</sup> ont montré que, jusqu'à 50 MeV, la proportion de fission symétrique varie avec le logarithme de l'énergie d'excitation. Nous avons supposé que cette loi de variation restait valable jusqu'à 150 MeV, cependant la perte n'étant pas connue avec précision, nous l'avons aussi gardée comme paramètre.

La figure 22 montre le meilleur accord que nous ayons pu obtenir avec cette première version des calculs. Pour obtenir une forme correcte sur les ailes de la distribution, il faut supposer une légère variation de la largeur de la distribution des caesium correspondant à un noyau fissionnant donné qui passe de 3,6 unités de masse pour les produits riches en neutrons (valeur obtenue en fission thermique) à 5 unités de masse pour les produits déficients en neutrons provenant des énergies d'excitation les plus élevées. Cependant, cette méthode de calcul ne permet pas de rendre compte de la section efficace de <sup>136</sup>Cs, toutes les distributions obtenues de cette façon ayant un sommet beaucoup trop plat. En fait, le seul paramètre qui influence fortement la forme de la distribution au voisinage de son sommet est le nombre de neutrons émis après la fission en fonction de la masse, les seules valeurs expérimentales du nombre de neutrons émis qui soient disponibles sont des distributions  $\nu = f(A)$  qui somment pour un même nombre de masse la contribution de plusieurs Z. Ce renseignement est en fait insuffisant pour nous puisque l'effet de la couche fermée  $N = 82$  qui ne devrait intervenir que pour le <sup>137</sup>Cs est réparti sur plusieurs masses dans la distribution expérimentale. Enfin le calcul simplifié que nous avons mentionné plus haut donne une moyenne de 8 neutrons émis avant fission alors que les mesures de Peter <sup>(50)</sup> en indiquent seulement 5 à 6.

Pour tenir compte de cela nous avons modifié ce calcul de la façon suivante :

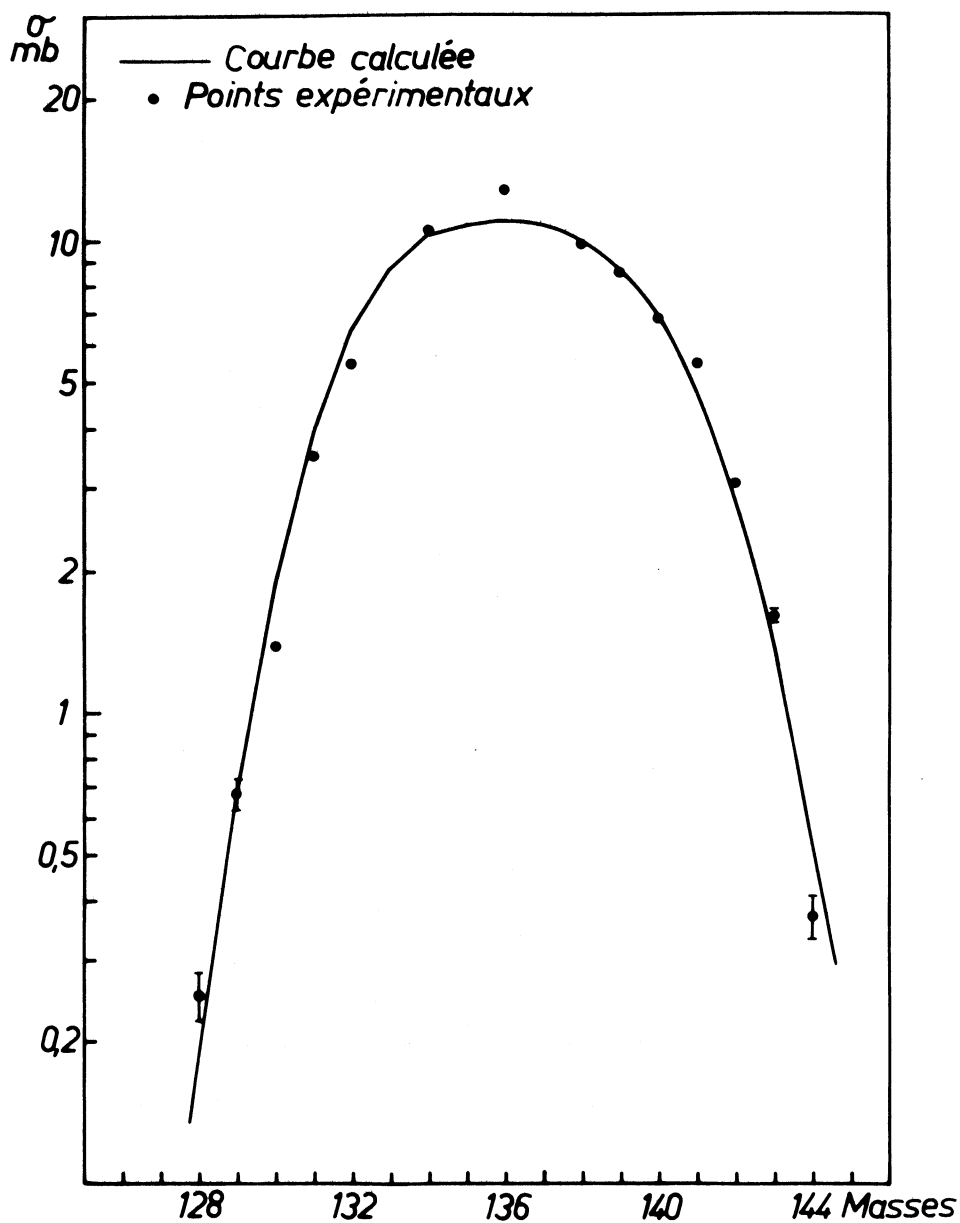


Fig. 22 - Résultats du premier calcul effectué pour rendre compte de la distribution expérimentale des isotopes du caesium. La section efficace expérimentale de  $^{136}\text{Cs}$  est nettement plus grande que la valeur calculée.

1. Au lieu de supposer que toute l'énergie d'excitation après la cascade est utilisée pour évaporer des neutrons avant fission, nous supposons qu'une part constante de cette énergie est conservée par le noyau jusqu'au moment de la fission. L'énergie d'excitation totale disponible est alors partagée entre les 2 fragments de façon à reproduire la distribution trouvée par Cheifetz <sup>(51)</sup> à 150 MeV pour l'énergie d'excitation moyenne des fragments en fonction de leur masse.

2. L'énergie d'excitation des fragments est alors utilisée pour évaporer des neutrons en tenant compte de leur énergie de liaison et en leur attribuant une énergie cinétique moyenne de 1,5 MeV, valeur mesurée par Peter <sup>(50)</sup>.

Le résultat de ce calcul apparaît sur la figure 23. Le sommet de la distribution est plus haut et rend compte de la section efficace expérimentale du <sup>136</sup>Cs. La forme générale de la courbe donne aussi un meilleur accord. La structure observée à la masse 137 n'est pas surprenante à cause de l'existence de la couche fermée à 82 neutrons, cependant sa valeur absolue peut être inexacte car l'ensemble du calcul a été effectué en utilisant la valeur moyenne de l'énergie cinétique des neutrons évaporés. Un calcul d'évaporation donnerait probablement de meilleurs résultats.

Une caractéristique très importante est la relative indépendance des paramètres que nous avons introduits. En effet, l'action principale de chaque paramètre porte sur une partie spécifique de la distribution des caesium, si bien qu'une modification faible d'un paramètre ne peut être compensée qu'en prenant pour les autres des valeurs nettement irréalistes.

Ainsi, par exemple, la position de l'aile déficiente en neutrons de la distribution des caesium est très sensible à l'évaporation des neutrons tandis que celle de l'aile riche en neutrons est sensible à la transition choisie entre ECD et UCD. Par ailleurs, leur pente détermine avec précision la valeur de la largeur de la distribution des caesium correspondant à une énergie d'excitation donnée des noyaux fissionnants, pour les énergies d'excitation très hautes et très basses respectivement. De même, la transition entre fission asymétrique et symétrique influence très fortement la forme générale de la courbe et le rendement élémentaire du caesium.

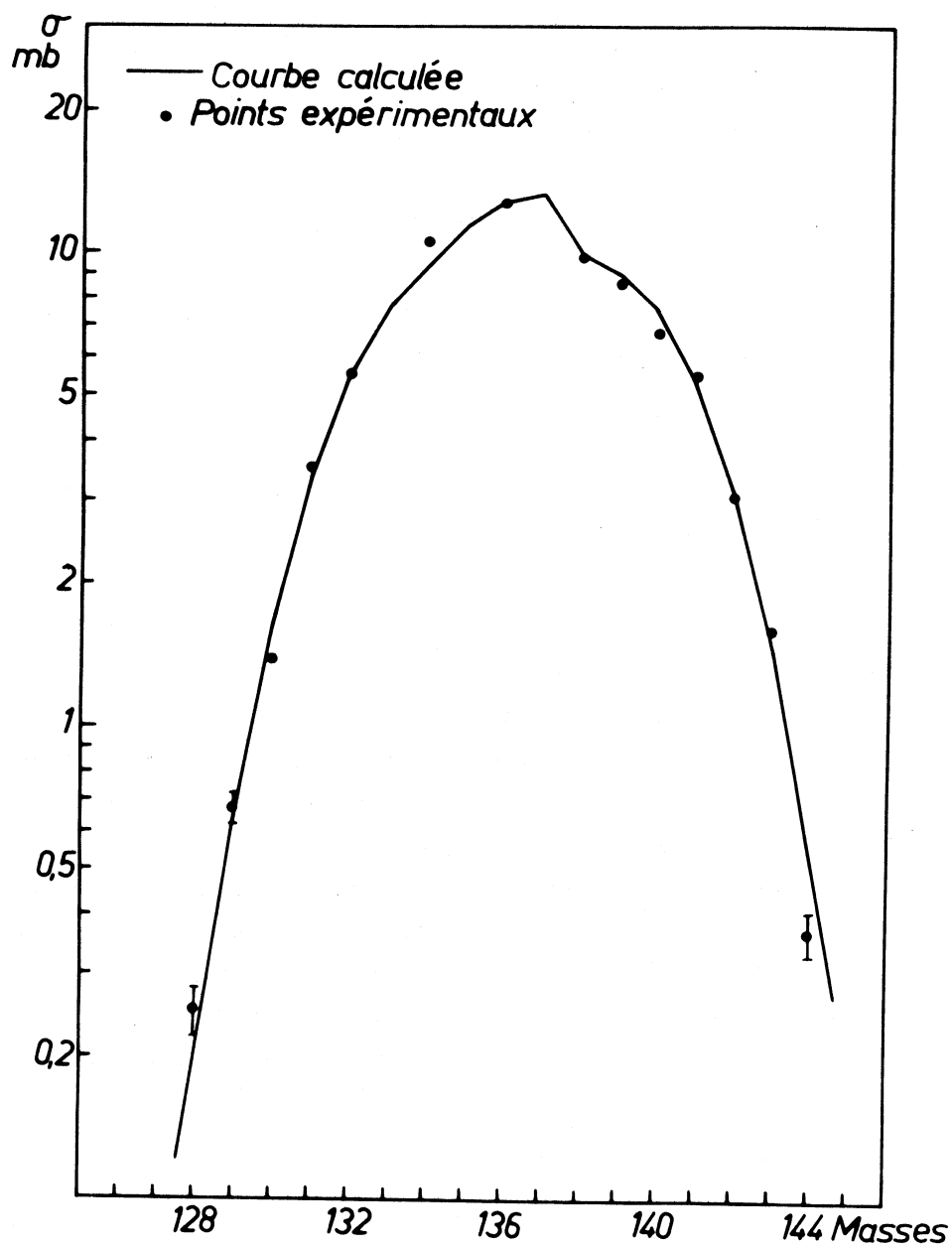


Fig. 23 - Résultats du second calcul effectué en tenant compte de la couche fermée de 82 neutrons. Ce calcul permet de rendre compte de la section efficace expérimentale du  $^{136}\text{Cs}$  et donne un meilleur accord avec les résultats expérimentaux.

## b) Résultats de ce calcul

Le calcul précédent nous permet donc d'obtenir un certain nombre de renseignements qui dans certains cas peuvent être comparés à des résultats obtenus par des méthodes totalement différentes et donnent ainsi des indications sur la validité de notre travail.

### 1. Caractéristiques des noyaux fissionnants.

Le résultat du calcul de cascade est, après émission d'un certain nombre de nucléons d'obtenir un noyau "résiduel" moyen dont la charge, la masse et l'énergie d'excitation moyenne sont les suivantes :

$$Z = 92,60 \qquad A = 237,39 \qquad E^* = 80,1 \text{ MeV}$$

Si maintenant nous ne considérons que les noyaux qui vont fissionner le noyau moyen "résiduel" devient le suivant :

$$Z = 92,67 \qquad A = 237,38 \qquad E^* = 88 \text{ MeV}$$

Si on compare ce noyau moyen avec celui résultant de l'ensemble des cascades, on constate une faible augmentation de la charge provenant du fait que la compétition de la fission sur l'émission de neutrons augmente avec la charge tandis que la masse reste pratiquement constante. Par ailleurs, l'énergie d'excitation moyenne augmente car les noyaux résiduels échappant à la fission ont des énergies d'excitations faibles. Nous obtenons ainsi, compte tenu d'un nombre calculé de 5,6 neutrons émis avant fission, un noyau fissionnant moyen de masse égale à 231,8. Par contre, si l'on considère l'énergie d'excitation moyenne des seuls noyaux produisant du caesium, elle n'est que de 75 MeV ce qui traduit le fait que le caesium est produit en grande quantité par fission asymétrique à basse énergie.

### 2. Fission symétrique et asymétrique

La figure 24 montre en fonction de l'énergie d'excitation la proportion de fission symétrique donnant le meilleur accord avec nos résultats sur le caesium. Cela nous permet de calculer la proportion de fission asymétrique (34%) et symétrique (66%).

Rappelons les valeurs de 30 et 70% estimées par Galin et al <sup>(48)</sup> à l'aide d'une méthode très différente faisant appel à la distribution des masses des produits.

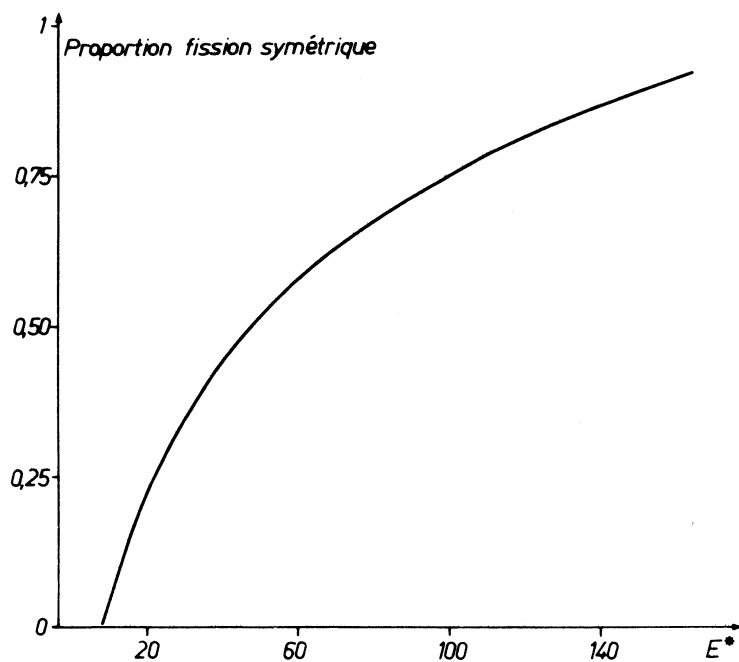


Fig. 24 - Proportion de fission symétrique en fonction de l'énergie d'excitation des noyaux fissionnants qui donne le meilleur accord avec l'expérience.

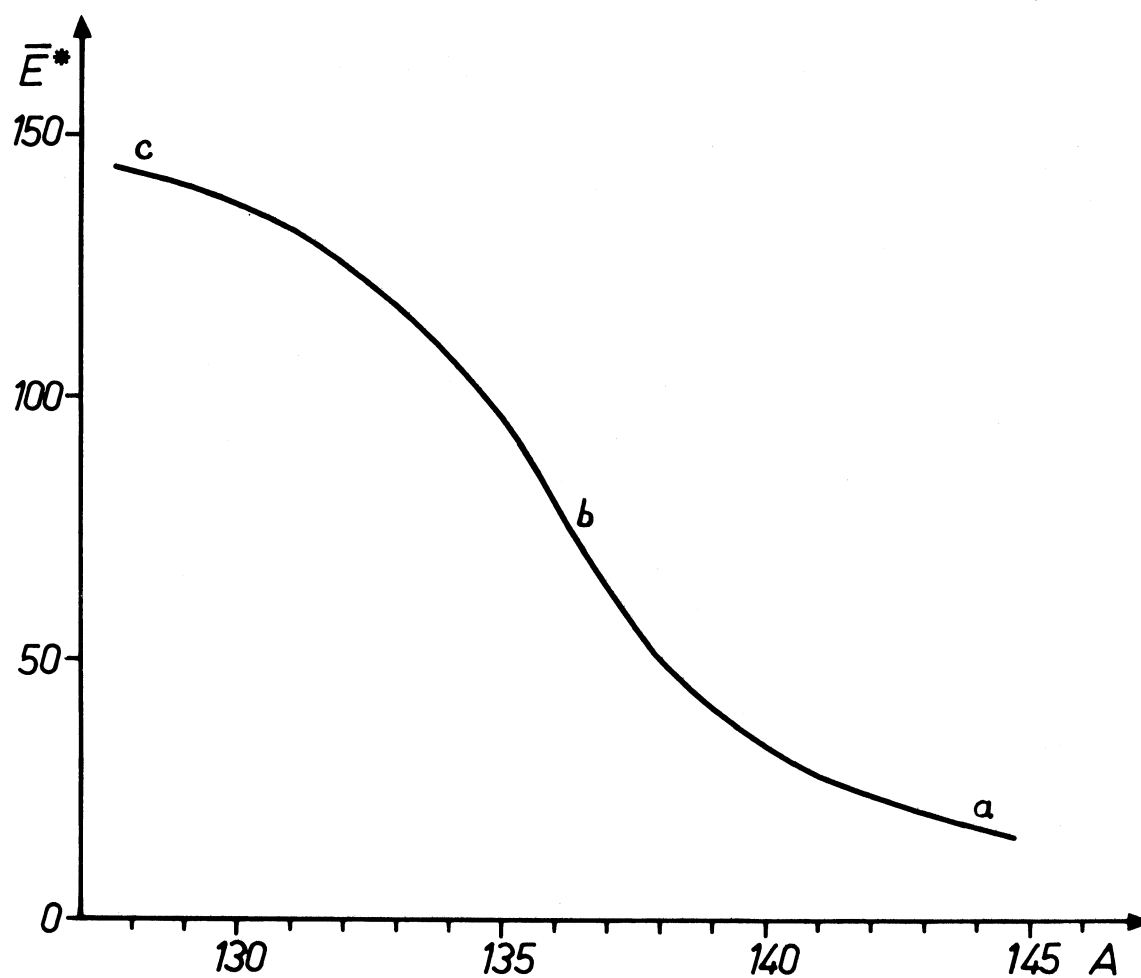


Fig. 25 - Energie d'excitation moyenne des noyaux fissionnants en fonction de la masse des isotopes de caesium formés.



### 3. Noyau fissionnant moyen produisant un isotope donné du caesium.

Un autre renseignement pouvant être tiré de notre calcul est l'énergie d'excitation moyenne des noyaux qui fissionnent en produisant un isotope donné de caesium. Elle apparaît sur la figure 25.

On a distingué sur cette courbe trois régions a,b,c, dont les caractéristiques sont les suivantes :

a) Cette région correspond aux isotopes très riches en neutrons qui ne peuvent être produits que pour de faibles énergies d'excitation. Si l'énergie d'excitation augmente, même faiblement, on obtient assez rapidement des isotopes moins riches en neutrons à cause de l'intervention de deux phénomènes qui vont tous deux dans le même sens : l'évaporation de neutrons et le passage ECD - UCD.

b) Ici le passage ECD - UCD ayant été effectué, seule subsiste l'évaporation de neutrons. Il faut donc une variation d'énergie plus grande qu'en a) pour avoir le même  $\Delta A$ .

c) Dans cette région, la variation d'énergie est de nouveau très faible car nous approchons de l'énergie maximum disponible dans notre cas. En effet, considérons la figure 26 où nous avons représenté schématiquement la probabilité de former un isotope donné du caesium en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant. Chaque isotope pourra être formé dans un domaine dépendant du nombre de neutrons qu'il est nécessaire d'évaporer.

Si les énergies d'excitation possibles couvrent tout ce domaine, la moyenne pour l'isotope considéré correspondra à peu près au centre du domaine et surtout dépendra très peu de l'énergie maximum disponible à moins de supposer des accidents dans la courbe de répartition des énergies d'excitation. Si au contraire, le domaine n'est pas entièrement couvert, les énergies calculées dépendent très fortement de l'énergie maximum et pourront être presque égales pour les isotopes déficients en neutrons qui, par contre, auront des sections efficaces très différentes.

A 156 MeV, nous pouvons considérer que les énergies moyennes correspondant à la production des caesium de masses 136 et supérieures ne changeront pas pour des énergies de bombardement plus élevées. Cela nous permet de comparer avec les résultats de Hogan et Sugarman <sup>(22)</sup> dans la fission de

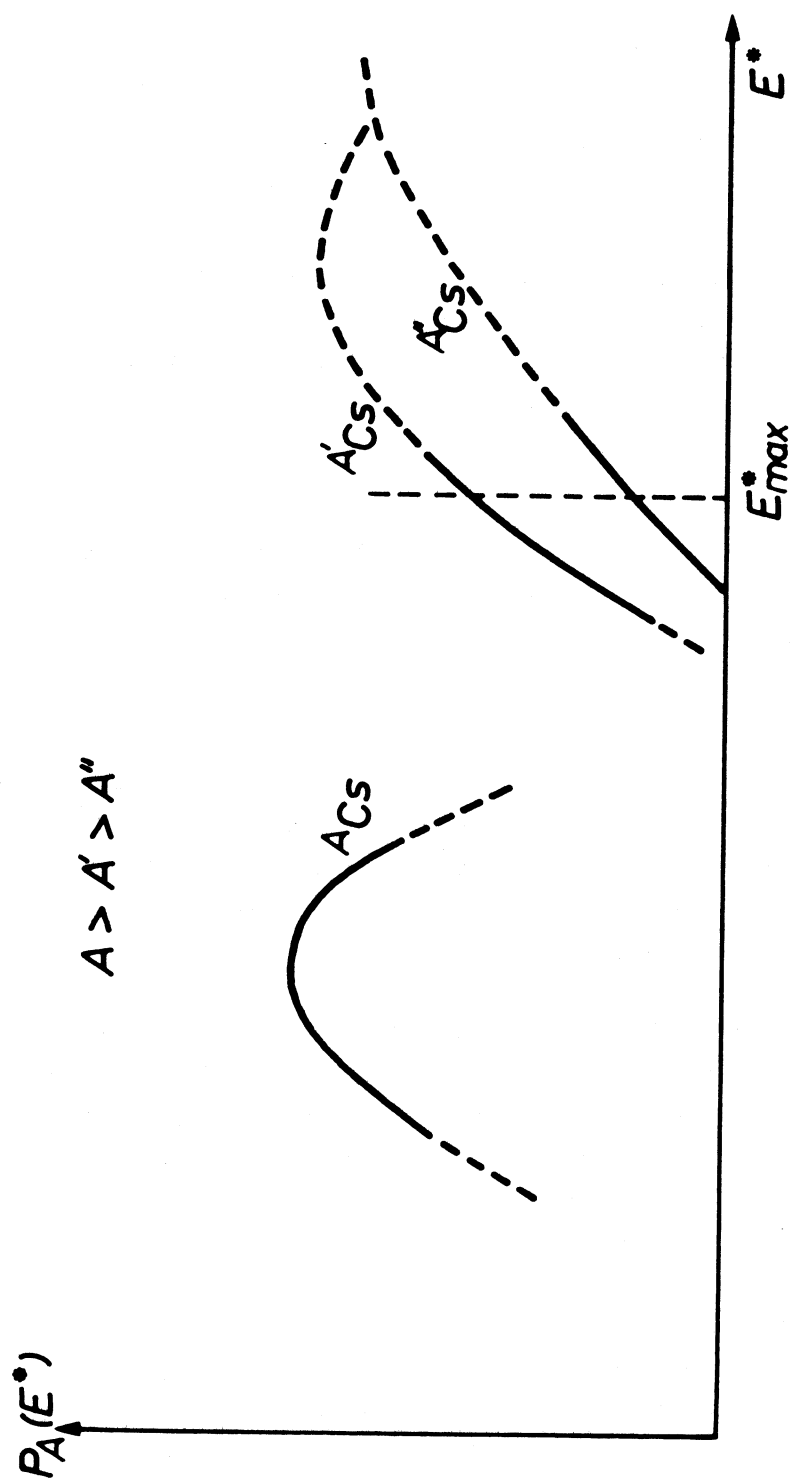


Fig. 26 - Représentation schématique des différents domaines de production d'isotopes déficients ou riches en neutrons en fonction de l'énergie d'excitation.

l'uranium par des protons de 440 MeV. Ces auteurs ont mesuré l'énergie d'excitation moyenne conduisant à un produit donné d'après les différences de parcours vers l'avant et vers l'arrière. Pour le  $^{139}\text{Ba}$  indépendant, ils ont trouvé une énergie de  $66 \pm 6$  MeV, notre valeur évaluée sur la courbe des caesium en utilisant le rapport N/Z est de 70 MeV.

Pour le  $^{139}\text{Cs}$  cumulatif, la comparaison est plus délicate car la proportion des différents parents change avec l'énergie des protons. Notre évaluation est de 32 MeV pour une valeur expérimentale de  $26 \pm 2$  MeV. Dans ces deux cas, nous avons donc un très bon accord.

### c) Conclusion

Le calcul que nous avons effectué permet de rendre compte de la distribution des isotopes du caesium dans la fission de l'uranium par des protons de 156 MeV. Cependant ce travail doit être poursuivi en particulier sur les points suivants :

1. Les paramètres que nous avons déterminés doivent rendre compte de la fission, à d'autres énergies de bombardement. Les résultats de l'expérience effectuée récemment à Grenoble à l'aide de protons de 50 MeV peuvent nous aider à éclaircir ce point, bien que les calculs de cascade doivent être utilisés avec précaution à une énergie aussi faible. Un calcul effectué sur les données préliminaires indique un accord raisonnable.

2. Utilisation des distributions de rubidium que nous avons mesurées. Dans ce cas le problème est un peu plus compliqué que pour le caesium car en fission asymétrique la position du pic des fragments légers varie avec le noyau fissionnant. Cependant, compte tenu des données expérimentales existant pour la fission à basse énergie, ce point doit pouvoir être résolu. Cela nous permettrait de disposer d'informations supplémentaires.

3. Il serait très intéressant de vérifier la première partie de notre calcul où nous avons déterminé pour chaque énergie d'excitation le nombre de noyaux qui vont fissionner. Pour cela il faudrait faire un calcul d'évaporation tenant compte de la compétition entre la fission et l'évaporation des neutrons en vérifiant que les produits de spallation ainsi trouvés rendent compte des sections efficaces mesurées dans l'uranium.

### 3) Fission et spallation à 24 GeV.

Pour conclure son exposé de revue sur la fission à haute énergie, présenté à la conférence de Salzbourg sur la fission en 1965, Friedlander signalait que le point le plus frappant était peut-être le peu d'informations que nous possédions sur ces réactions aussi bien du point de vue théorique que du point de vue expérimental. Si depuis cette époque des progrès ont été accomplis, cette conclusion reste en partie valable actuellement : par exemple, si nous considérons la courbe de répartition en fonction de leur masse des noyaux produits dans l'uranium, sur un intervalle de plus de 150 masses, seuls 16 points ont été mesurés actuellement et dans le cas des autres noyaux lourds tel le thorium, la situation est pire. Elle tient à l'extrême complexité des phénomènes pour des énergies de bombardement de quelques GeV, car les produits formés couvrent toutes les masses jusqu'à celle de la cible avec pour chaque valeur de masse ou de charge des distributions très larges.

Ainsi les distributions que nous avons mesurées dans l'uranium s'étendent sur 21 unités de masses pour le rubidium, 26 unités de masses pour le caesium et nous pouvons estimer à 1500 le nombre d'isotopes formés avec des sections efficaces supérieures à quelques  $\mu\text{b}$ .

Afin de comparer nos résultats avec les données existantes sur les réactions nucléaires à très haute énergie, nous avons tracé en fonction de  $N/Z$  les sections efficaces de production des isotopes du caesium que nous avons mesurées dans l'uranium et le tantale avec celles obtenues par Rudstam et Sørensen <sup>(30)</sup> sur l'iode et par Hagebø et Ravn <sup>(25)</sup> sur l'antimoine à partir des mêmes cibles bombardées par des protons de 18 GeV. Cette comparaison apparaît sur la figure 27 qui montre que nos mesures s'étendent beaucoup plus loin que celles effectuées sur l'iode et l'antimoine, à la fois pour les isotopes riches et déficients en neutrons. Ce point illustre le fait que, grâce à la très grande vitesse de diffusion des alcalins dans le graphite et à la détection directe des ions, notre méthode, à l'inverse de la radiochimie, est limitée beaucoup plus par la diminution des sections efficaces que par celle des durées de vie des isotopes loin de la stabilité.

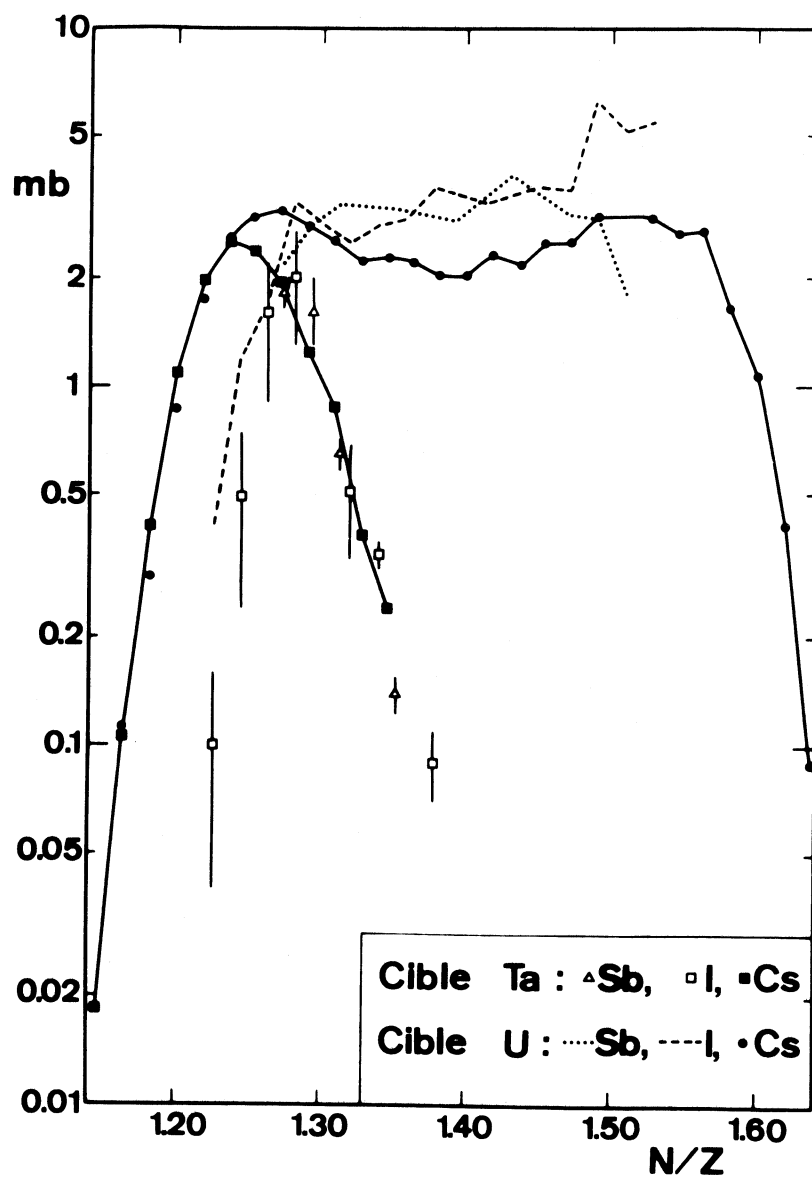


Fig. 27 - Comparaison, en fonction du rapport  $N/Z$  des produits, des sections efficaces de formation dans des cibles de tantale et d'uranium des isotopes d'antimoine <sup>(25)</sup> et d'iode <sup>(30)</sup> avec celles de caesium que nous avons mesurées.

Cette figure illustre aussi la procédure que nous avons utilisée pour normaliser la distribution des caesium mesurés dans le tantale. En effet, il n'existe aucune mesure de section efficace de production d'isotopes du caesium dans le tantale aussi avons-nous essayé d'utiliser les données correspondantes sur l'iode et l'antimoine (dans le tantale, la courbe de masse varie très peu dans cette zone et ces trois éléments doivent être produits par le même processus). Nous pouvons donc nous attendre à des distributions identiques si nous portons les résultats en fonction de  $N/Z$ . En fait, si nous comparons les distributions correspondantes à l'iode et au caesium nous trouvons un désaccord à la fois pour la position du centre des distributions et pour les largeurs à mi-hauteur. Ce désaccord pourrait provenir d'une sous-estimation des sections efficaces de production des isotopes d'iode les plus déficients en neutrons à cause d'une connaissance insuffisante des schémas de désintégration ou de l'existence possible d'isomères à périodes très courtes décroissant par  $\beta^+$ . Cette seconde hypothèse semble assez plausible du fait de l'existence d'une zone de déformation couvrant cette région et conduisant à des isomères de périodes très courtes pour les  $^{122}\text{Cs}$  et  $^{123}\text{Cs}$  en particulier <sup>(52)</sup>. Pour éviter cette difficulté dans notre normalisation, nous n'avons utilisé que les isotopes de l'iode et de l'antimoine qui correspondent à l'aile droite des distributions (masses élevées).

#### A - Sections efficaces élémentaires pour la fission

Les sections efficaces élémentaires que nous avons mesurées dans le tantale, le thorium et l'uranium sont portées sur la figure 28 qui montre la très grande différence de comportement entre l'uranium et le tantale. Cependant, si nous nous reportons aux figures 16 et 17, nous constatons que les isotopes de rubidium et de caesium les plus déficients en neutrons, qu'ils soient produits dans l'uranium, le thorium ou le tantale ont des sections efficaces très voisines, et qui décroissent de façon analogue lorsqu'on s'éloigne de la stabilité. Ce fait avait déjà été signalé par Rudstam et Sørensen <sup>(30)</sup> pour l'iode produite dans des cibles d'uranium et de tantale. Ces auteurs, tenant compte de la brutale diminution des énergies de recul de ces mêmes isotopes, mesurées en particulier par Brandt <sup>(34)</sup>, concluaient que dans l'uranium ces isotopes étaient produits par spallation.

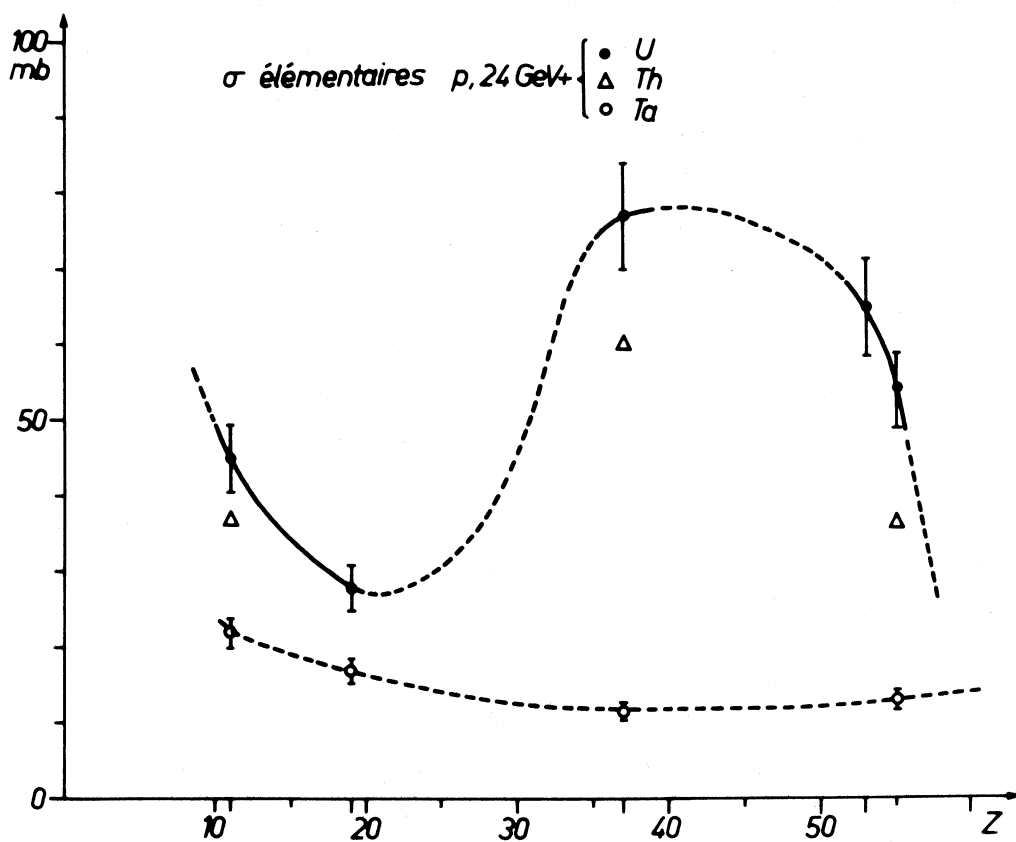


Fig. 28 - Sections efficaces élémentaires des sodium, potassium, rubidium et caesium formés dans des cibles de tantale, thorium et uranium bombardées par des protons de 24 GeV.

Nos données sur les isotopes de rubidium formés dans le tantale apportent une précision supplémentaire. En effet, le rubidium pourrait à priori (à la différence de l'iode et du caesium) être formé soit par fission, soit par spallation. Cependant, nous montrerons plus loin que la contribution de fission est faible dans ce cas.

Examinons donc la contribution de spallation pour ces différentes cibles : la distance cible-produit est un paramètre très important de la spallation, or nous avons  $\Delta A \approx 100$  en moyenne pour le rubidium formé dans le tantale,  $\Delta A \approx 108$  pour le caesium dans le thorium et  $\Delta A \approx 114$  pour le caesium dans l'uranium. L'énergie d'excitation moyenne augmentant avec la masse de la cible, on doit s'attendre à trouver pour le caesium dans l'uranium et le thorium une contribution de spallation analogue à celle trouvée pour le rubidium dans le tantale, Pour le rubidium formé dans l'uranium et le thorium, la contribution sera légèrement inférieure.

Dans ces deux derniers cas, on pourrait se poser la question d'une compétition fission-spallation. En fait, d'après Rudstam et Sørensen <sup>(30)</sup>, il est peu probable que des cascades aussi complexes conduisent à des noyaux facilement fissiles.

En conséquence nous avons retranché des distributions du rubidium et du caesium dans le thorium et l'uranium, une distribution ayant respectivement la même forme que celle du rubidium et du caesium dans le tantale et dont la hauteur a été définie par normalisation sur les isotopes les plus déficients en neutrons. Nous obtenons ainsi les sections efficaces élémentaires portées dans le tableau suivant qui contient aussi celles obtenues à 156 MeV pour comparaison :

Elément	Energie	Th		U	
		Fission	Spallation	Fission	Spallation
Rb	156 MeV	66,0	0	71,5	0
	24 GeV	50,2	9,4	68	9,0
Cs	156 MeV	25,2	0	100	0
	24 GeV	23,5	13,1	44,3	9,9



Ce tableau montre le comportement très différent du rubidium et du caesium produits dans l'uranium quand on augmente l'énergie de bombardement. La section efficace élémentaire du rubidium reste pratiquement constante tandis que celle du caesium diminue d'un facteur supérieur à 2. Ce fait peut s'expliquer par une augmentation du nombre de noyaux fissionnant symétriquement et de masse relativement légère qui vont produire plus de rubidium que de caesium. Pour le thorium la différence de comportement est beaucoup moins sensible car même à 156 MeV cette cible produit peu de caesium qui est caractéristique de la fission asymétrique à basse énergie.

## B - Distributions de charge

### a) Cible d'uranium

Il est beaucoup plus difficile que dans la fission à 156 MeV de transformer la distribution isotopique des caesium en une distribution de charge. En effet, la distribution des masses des produits est mal connue, nous n'avons aucune information sur l'évolution de  $N/Z_p$  et enfin, la distribution des caesium s'étendant sur 26 masses, il est difficile de faire l'hypothèse que la forme de la distribution de charge ne varie pas dans un intervalle aussi grand.

Par contre, nous pouvons tenter d'utiliser une zone de masse limitée en complétant nos mesures par des mesures sur des éléments voisins : si nous considérons la zone de masse 118-125, nous pouvons admettre que dans cette zone étroite, ni la forme de la distribution de charge, ni la distribution des masses ne vont varier de façon importante. Ceci nous permet d'utiliser les résultats obtenus à 18 GeV par Rudstam et Sørensen (30) pour  $^{118}\text{Te}$ ,  $^{123}\text{I}$  et  $^{125}\text{I}$  et ceux de Hagebö et Ravn (25) pour  $^{118}\text{Sb}$ ,  $^{120}\text{Sb}$  et  $^{122}\text{Sb}$ . Nous pouvons ainsi, en portant ces valeurs en fonction de  $N/Z$ , obtenir la forme de la distribution de charge pour les produits déficients en neutrons aux alentours de la masse 122. Les résultats apparaissent sur la figure 29.

Il serait très intéressant d'effectuer le même travail pour les isotopes riches en neutrons du caesium. Malheureusement, vers la masse 140, à l'énergie considérée ici, il n'existe pas un nombre suffisant de mesures sur des éléments autres que le caesium. Par ailleurs, à ce niveau, la courbe du rendement en fonction de la masse varie beaucoup plus rapidement que vers la masse 122 ce qui introduit une incertitude supplémentaire. Pour le rubidium dans la cible

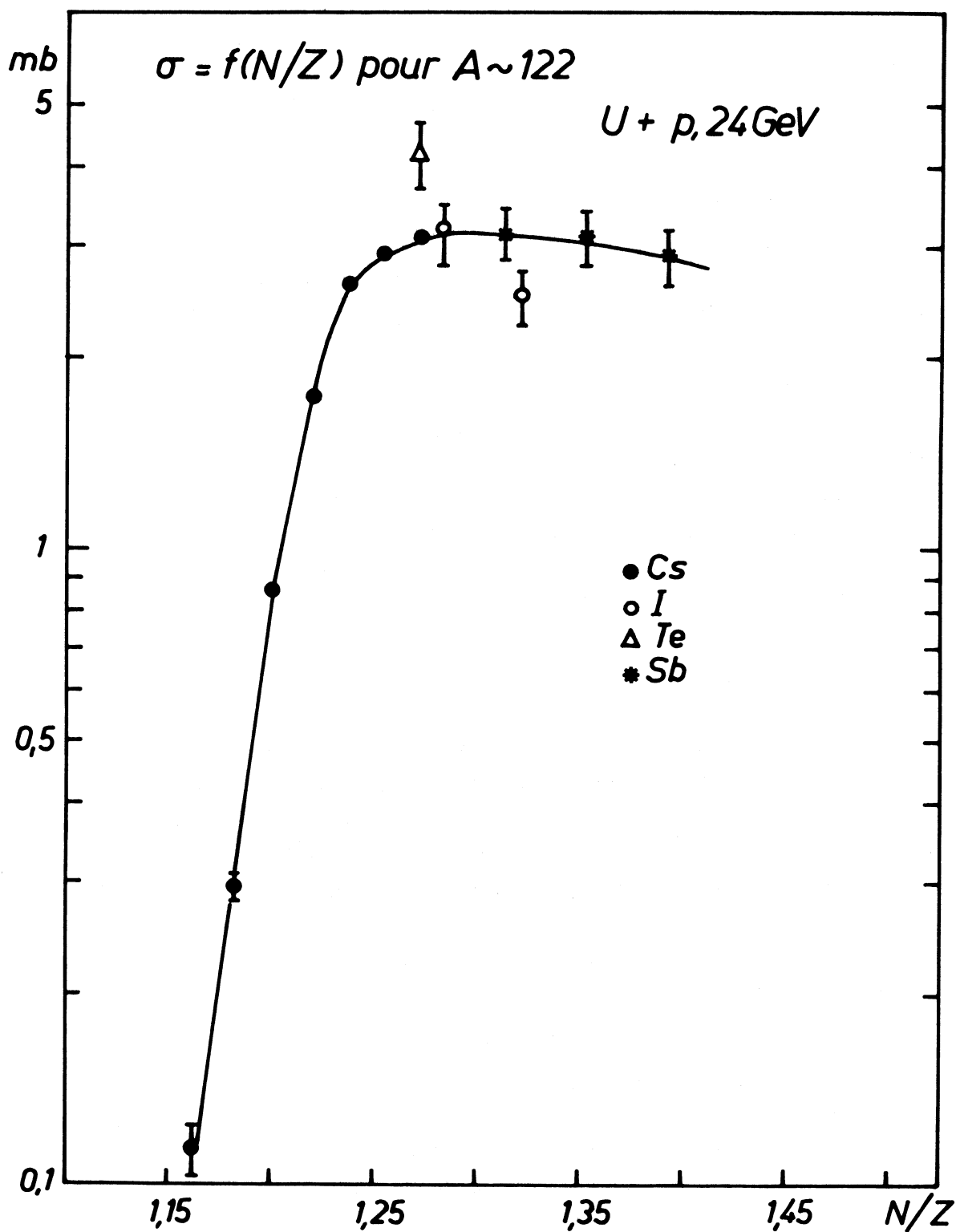


Fig. 29 - Distribution de charge à la masse 122 des produits formés dans le bombardement de l'uranium par des protons de 18 ou 24 GeV.

d'uranium la situation est semblable tandis que pour les rubidium et caesium dans le thorium la situation est pire car la distribution des masses n'est pas connue, même de façon approximative.

b) Cible de tantale

Dans cette cible nous disposons des distributions isotopiques de potassium, rubidium et caesium que nous avons mesurées et celle du sodium mesurée par Mme Thibault <sup>(8)</sup>. Ici le problème est beaucoup plus simple car les distributions sont très étroites (figures 15, 16 et 17), et la courbe de masse ne subit pas de variations rapides excepté peut-être au voisinage du sodium.

Les distributions de potassium, rubidium et caesium présentent les mêmes caractéristiques : une forme presque gaussienne avec cependant une pente nettement plus faible du côté des isotopes les plus riches en neutrons et des sections efficaces du même ordre de grandeur. Dans le cas du sodium, la distribution est assez différente car il apparaît un effet pair-impair, les isotopes possédant un nombre pair de neutrons ayant des sections efficaces nettement plus grandes.

Pour ces quatre éléments nous pouvons calculer la masse la plus probable  $\bar{A}$ , en prenant le centre de gravité de chaque distribution d'où  $N_p/Z$  rapport de nombre de neutrons le plus probable au nombre de protons. Sauf pour le sodium qui, à cause de l'effet pair-impair possède une forme trop irrégulière, nous pouvons définir une largeur à mi-hauteur pour chaque distribution isotopique bien que les distributions ne soient pas parfaitement gaussiennes. Ces largeurs obtenues en unités de masse peuvent être facilement transformées en unités de charge car, outre la faible variation de la courbe de masse, l'absence d'une composante importante de fission nous permet de penser que la valeur de  $N_p/Z$  reste constante dans chacune des zones couvertes par les distributions isotopiques.

Ces résultats sont portés dans le tableau 10.

Les figures 30 et 31 montrent respectivement les variations de  $N_p/Z$  et de la largeur en fonction de  $Z$ . Ces deux variations peuvent être représentées par des droites avec une très bonne approximation. Ces deux courbes jointes à la courbe du rendement en masse ou du rendement élémentaire permettent de calculer les sections efficaces de tous les isotopes de  $Z$  compris entre 19 et 55 formés dans une cible de tantale bombardée par des protons de 24 GeV.

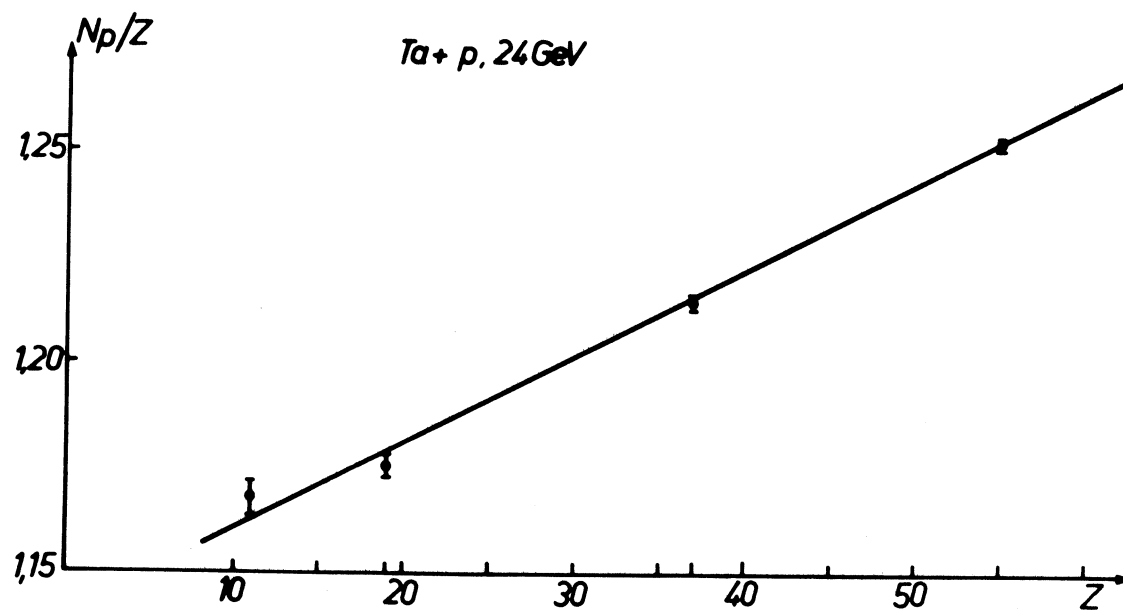


Fig. 30 - Rapport du nombre de neutrons le plus probable au nombre de protons en fonction de la charge pour les éléments formés dans le tantale bombardé par des protons de 24 GeV.

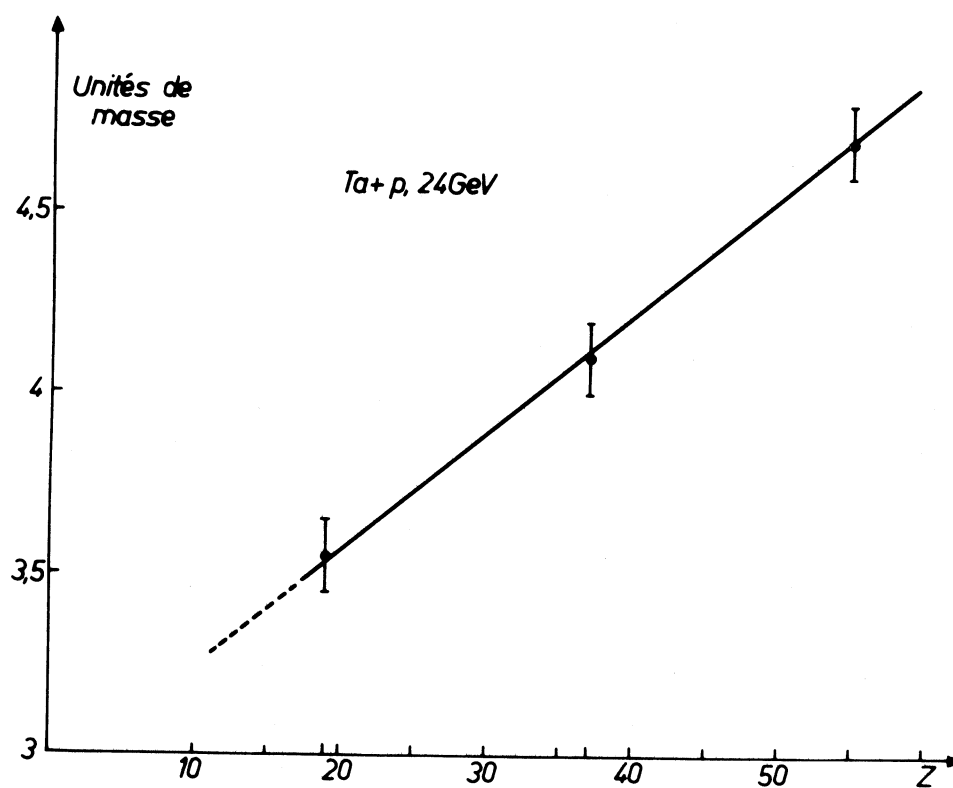


Fig. 31 - Largeur à mi-hauteur en unités de masse des distributions isotopiques des produits formés dans le tantale.

Tableau 10

	Cs	Rb	K	Na
$\bar{A}$	123,84 $\pm$ 0,05	81,94 $\pm$ 0,05	41,33 $\pm$ 0,05	23,85 $\pm$ 0,05
$N_p/Z$	1,2516 $\pm$ 0,0009	1,2146 $\pm$ 0,0013	1,1753 $\pm$ 0,0027	1,1681 $\pm$ 0,0045
Largeurs à mi-hauteur				
unités de masse	4,7 $\pm$ 0,1	4,1 $\pm$ 0,1	3,55 $\pm$ 0,1	
unités de charge	2,08	1,85	1,63	

Il peut paraître surprenant que la distribution du rubidium ne soit pas perturbée par l'apport dû à la fission du tantale, car le pic des produits de fission est attendu vers les masses 80 ou 85. Ceci peut s'expliquer pour deux raisons :

1. La section efficace de fission du tantale est très faible

A 150 MeV la mesure de Stephan <sup>(2)</sup> donne 1,6 mb tandis qu'à haute énergie Perfi-lov <sup>(53)</sup> indique 0,5% de la section efficace totale soit un peu moins de 10 mb. Ainsi aux masses considérées la section efficace des produits de fission représente certainement moins de la moitié de la valeur totale.

2. La fission du tantale conduirait aux mêmes isotopes que la spallation

La fission du tantale ne se produit que pour des énergies d'excitation très élevées. A ces énergies, un grand nombre de neutrons peuvent être évaporés et on montre facilement qu'on aboutit au même rapport N/Z que pour les produits de spallation.

### C - Production d'isotopes riches en neutrons dans la fission à haute énergie

Si l'on compare les sections efficaces des isotopes de rubidium et caesium très riches en neutrons produits dans l'uranium par des protons de 150 MeV et de 24 GeV, on remarque qu'elles varient très peu malgré la très grande différence d'énergie de bombardement. La figure 32 montre les rapports R de la section efficace à 150 MeV sur celle à 24 GeV pour les 5 isotopes les plus riches en neutrons du rubidium et du caesium. Les erreurs représentées correspondent à une incertitude de 10% sur les normalisations par radiochimie. La droite horizontale représente le rapport des sections efficaces totales de fission qui a pour valeur  $2,17 \pm 0,25$  tandis que la zone hachurée représente l'incertitude. Cette valeur est obtenue d'après les mesures de Stephan <sup>(2)</sup>, Stevenson et al <sup>(54)</sup> et Steiner et Jungerman <sup>(55)</sup> à 156 MeV et de Hudis et Katcoff <sup>(56)</sup> à 29 GeV.

Nous voyons ainsi que les sections efficaces absolues des isotopes les plus riches en neutrons diminuent moins vite que la section efficace totale de fission lorsqu'on augmente l'énergie des protons. Ces mêmes sections efficaces exprimées en % de fission vont donc augmenter entre 156 MeV et 24 GeV.

Cette observation rejoint celle de Gauvin et Sauvage <sup>(57)</sup> qui en comparant leurs résultats sur l'émission des neutrons différés dans la fission de l'uranium à 156 MeV avec ceux de Dostrovsky et al <sup>(58)</sup> à 1 et 2,8 GeV, constatent que le nombre de neutrons différés exprimés en % de fission ne varie pratiquement pas dans ce domaine d'énergie. Or les neutrons différés sont caractéristiques des isotopes très riches en neutrons produits dans la fission à basse énergie. Ces résultats montrent que la probabilité d'obtenir des énergies d'excitation très faibles est pratiquement constante pour des énergies de protons supérieures à 156 MeV.

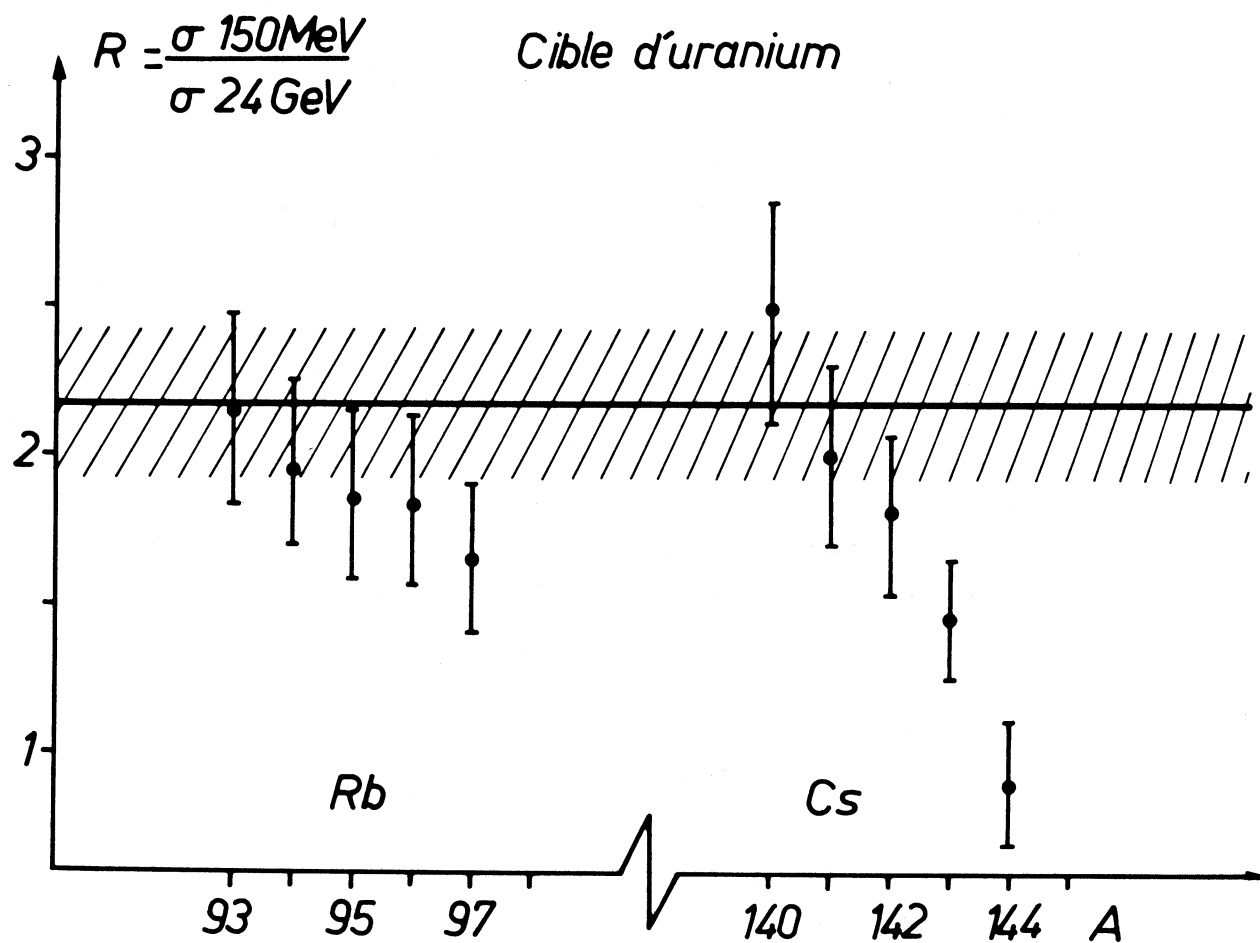


Fig. 32 - Rapport des sections efficaces à 156 MeV et à 24 GeV en fonction de la masse, pour les isotopes très riches en neutrons du rubidium et du caesium. La ligne horizontale représente le rapport des sections efficaces totales de fission à ces deux énergies, la zone hachurée représentant l'incertitude correspondante.

## C O N C L U S I O N

En tant que contribution à l'étude de la fission, ce travail présente un caractère particulier sur lequel nous voudrions nous interroger au terme de cette étude.

A l'inverse de beaucoup de travaux, notre démarche a été de partir des possibilités, que nous estimions très riches, d'un nouvel instrument. Nous pensions que les renseignements originaux ainsi recueillis étaient susceptibles d'améliorer nos connaissances sur la fission.

Cette entreprise n'était pas sans risques :

- D'abord, il n'était nullement évident que nous réussirions effectivement à mesurer de façon précise et complète toutes les sections efficaces des isotopes des éléments rubidium et caesium qui formaient notre objectif. Comme on l'a vu dans ce qui précède, cet objectif a été largement atteint puisque c'est plus de 220 sections efficaces que nous avons pu mesurer.

- Sur un autre plan, on pouvait aussi se demander si des renseignements évidemment très détaillés mais ne portant que sur deux éléments pouvaient amener une meilleure compréhension des mécanismes que les renseignements habituels, moins précis ou complets mais portant sur un plus large éventail d'éléments.

A cette seconde question, nous n'apportons évidemment pas une réponse aussi nette qu'à la première. On est frappé néanmoins du bon accord que nous avons pu obtenir à 156 MeV entre le calcul et l'expérience. Il est vrai que notre calcul faisait appel au départ à des paramètres relativement nombreux.



Si nous avons pu l'employer en réduisant au minimum la part d'arbitraire, c'est bien à cause du grand nombre de sections efficaces dont nous disposons. Mieux, on peut dire que la partie originale de notre apport expérimental (la détermination des ailes des distributions de sections efficaces correspondant à des mesures inaccessibles par radiochimie) est essentielle pour la fixation des paramètres.

Bien entendu, dans la mesure où ce travail nous semble ouvrir une voie nouvelle, il est incomplet par nature et nous voudrions pour conclure indiquer dans quelles directions il pourrait être étendu.

La méthode étant maintenant tout à fait au point pour les alcalins, il nous semble que c'est son exploitation qui est susceptible de donner dans l'immédiat les meilleurs résultats :

Dans le domaine des moyennes énergies, une variation de ce paramètre permettrait une comparaison plus fine avec les calculs de cascade. A basse énergie, le paramètre intéressant serait la nature de la cible.

Bien entendu, si une technique semblable pouvait être appliquée à d'autres éléments, l'intérêt de ces études serait notablement accru. Remarquons-le d'emblée : une méthode dont le principal intérêt est d'être sélective ne saurait en même temps être universelle.

Il y a cependant des cas particuliers autres que les alcalins où cette sélectivité serait maintenue.

Citons par exemple l'indium qui est relativement facile à ioniser et se sépare bien de ses voisins et les halogènes, iode et brome, qui peuvent être émis sous forme d'ions négatifs.

Les difficultés dans ces deux cas sont doubles : d'une part, le rendement sera probablement plus bas que pour les alcalins (ceci n'est pas forcément un obstacle avec la nouvelle génération d'accélérateurs ou réacteurs à forte intensité), d'autre part, il faudrait trouver un milieu où la diffusion de ces éléments soit très rapide. Les études nécessaires pour préciser ce second point, représenteraient de toute façon un intérêt intrinsèque du point de vue de la compréhension de la diffusion.

## B I B L I O G R A P H I E

- 1 - Kowalski L., Thèse Orsay (1963)
- 2 - Stephan C., Thèse Orsay (1965)
- 3 - Klapisch R., Thèse Orsay (1966)
- 4 - Amarel I., Thèse Orsay (1967)
- 5 - Gradsztajn E., Thèse Paris (1965)
- 6 - Kjelberg A. et Pappas A., Nucl. Phys. 1 (1956) 322.
- 7 - Pappas A. et Hagebø E., J. Inorg. Nucl. Chem. 28 (1966) 1769.
- 8 - Thibault C., Thèse Orsay (1971)
- 9 - Wahl A.C., J. Inorg. Nucl. Chem. 6 (1958) 263.
- 10 - Kaminsky M., Atomic and ionic impact phenomena on metal surfaces  
Academic, New-York 1965.
- 11 - Dietz L.A., Review of Scientific Instruments, vol. 36,12 (1965) 1763.
- 12 - Crespo V.P., Cumming J.B. et Poskanzer A.M., Phys. Rev. 174,4 (1968) 1455.
- 13 - Friedlander G., Friedman L. Gordon B. et Yaffé L., Phys. Rev. 129,4 (1963)  
1809.
- 14 - Wahl A.C., Communication personnelle 1969.
- 15 - Niday J.B., Phys. Rev. 121 (1961) 1471.
- 16 - Brown F. et Oliver B.H., Can. J. Chem., 39 (1961) 616.
- 17 - Hollstein M., Thèse Kernforschungszentrum, Karlsruhe (1965).
- 18 - Hagebø E., Pappas A.C. et Aagaard P., J. Inorg. Nucl. Chem. 26 (1964) 1639.
- 19 - Hicks H.G. et Gilbert R.S., Phys. Rev. 100 (1955) 1286.

- 20 - Davies J.H. et Yaffé L., Can. J. Phys. 41 (1963) 762.
- 21 - Erdal B., Communication personnelle (1970).
- 22 - Hogan J.J. et Sugarman N., Phys. Rev. 182 (1969) 1210.
- 23 - Klapisch R. Chaumont J., Jastrzebski J., Bernas R, Simonoff G.N., and Lagarde M., Phys. Rev. Letters 20, 14 (1968) 743.
- 24 - Husain L. et Katcoff S. Communication personnelle (1970).
- 25 - Hagebø E. et Ravn H., J. Inorg. Nucl. Chem. 31 (1969) 897.
- 26 - Ravn H., J. Inorg. Nucl. Chem. 34 (1969) 1883.
- 27 - Porile N.T. et Tanaka S., Phys. Rev. 135, 1B (1964) 122.
- 28 - Simonoff G.N. et Lagarde M., Communication personnelle (1969).
- 29 - Bächmann K., Communication personnelle (1969)
- 30 - Rudstam G. et Sørensen G., J. Inorg. Nucl. Chem. 28 (1966) 771.
- 31 - Friedlander G., Franz E.M., Chu Y.Y., Communication personnelle (1970)
- 32 - Neidhart B., Trabitzsch U., Bächmann K., Communication présentée à la 5ème conférence européenne sur les réactions à haute énergie, Ribérac (1969).
- 33 - Alexander J., Baltzinger C. et Gazdik M., Phys. Rev. 129, 4 (1963) 1826.
- 34 - Brandt R., Proceedings of the Symposium on physics and chemistry of fission Salzburg, Vol II (1965) 329.
- 35 - Chaumont J., Roeckl E., Nir-El Y., Thibault-Philippe C., Klapisch R. et Bernas R., Phys. Letters 29B (1969) 652.
- 36 - Wahl A.C., Norris A.E., Rouse R.A., Williams J.C., Proceedings of the second symposium on Physics and Chemistry of fission - Vienna (1969) 813.
- 37 - MC Hugh J.A., J. Inorg. Nucl. Chem. 28 (1966) 1787.
- 38 - Apalin V.F., Gritsynk Y.N., Kutikov I.E., Lebedev V.I., Mikaelian L.A., Nucl. Phys. 71 (1965) 553.
- 39 - Maslin E.E., Rodgers A.L., Core W.F.G., Phys. Rev. 164 (1967) 1520.
- 40 - Terrell J., Phys. Rev. 127 (1962) 880.
- 41 - Nifenecker H., Fréhaut J., Soleilhac M. Proceedings of the second symposium on Physics and Chemistry of fission - Vienna, (1969) 491.

- 42 - Milton J.C.D., Fraser J.S., Proceedings of the symposium on Physics and Chemistry of fission, Salzburg, Vol II (1965) 39.
- 43 - Norris A.E., Wahl A.C., Phys. Rev. 146 (1966) 926.
- 44 - Wahl A.C., Ferguson R.L., Nethaway O.R., Troutner D.E., Wolfsberg K., Phys. Rev. 126 (1962) 1112.
- 45 - Cohen J.P., Thèse Orsay 1968.
- 46 - Vandebosch R., Huizenga J.R., Proceedings of the second United Nations Conference on the peaceful uses of atomic energy, 15, Geneva, 1958.
- 47 - Hyde E.K., The nuclear properties of the heavy elements, Vol III (Prentice-hall, Inc.) p. 110.
- 48 - Galin J., Lefort M., Peter J., Tarrago X., Cheifetz E., Fraenkel Z., Nucl. Phys. A134 (1969) 513.
- 49 - Rudstam G., Pappas A.C., Nucl. Phys. 22 (1961) 468.
- 50 - Peter J., Thèse Orsay (1968).
- 51 - Cheifetz, Thèse Rehovoth, Israël.
- 52 - Alexander, K., Neubert W., Rotter H., JINR Dubna, rapport P 7 - (1967) 3185.
- 53 - Perfilov N.A., Sov. Phys. JETP 14 (1962) 623.
- 54 - Stevenson P.C., Hicks H.G., Nervik W.E., Nethaway D.R., Phys. Rev. 111 (1958) 886.
- 55 - Steiner H.M., Jungerman J.A., Phys. Rev. 101, (1956) 807.
- 56 - Hudis J., Katcoff S., Phys. Rev. 180 (1969) 1122.
- 57 - Gauvin H., Sauvage L., J. Inorg. Nucl. Chem. 29 (1967) 2839.
- 58 - Dostrovsky I., Davis R., Poskanzer A.M., Reeder P.L., Phys. Rev. 139B (1965) 1513.



## TABLE DES MATIERES

	Pages
INTRODUCTION .....	1
CHAPITRE I - METHODE EXPERIMENTALE .....	4
1 - Description générale du spectromètre .....	4
2 - Construction de la cible .....	10
3 - Contamination par les éléments naturels .....	11
4 - Enregistrement des spectres de masse .....	12
CHAPITRE II - DISCUSSION DES CARACTERISTIQUES DE L'EXPERIENCE .....	16
1 - Sélectivité chimique .....	16
2 - Diffusion .....	18
3 - Mesure des sections efficaces indépendantes .....	21
4 - Corrections de diffusion et de décroissance radioactive ...	23
5 - Discrimination due au spectromètre de masse .....	24
6 - Discrimination due aux processus de formation des isotopes étudiés .....	27
7 - Bruit de fond et sensibilité aux $\beta$ .....	31
8 - Mesure des périodes des isotopes à vie très courte .....	33
CHAPITRE III - RESULTATS EXPERIMENTAUX .....	35
1 - Fission thermique .....	35
Discrimination due aux différences de parcours des produits .....	37
2 - Fission à 156 MeV .....	38
Normalisation .....	38
Structure dans la distribution du caesium .....	41
Discrimination due aux différences de parcours des produits .....	43
Contribution des parois du four et des particules secondaires .....	44

3 - Fission et spallation à 24 GeV .....	44
A - Distribution des isotopes du potassium .....	45
Normalisation .....	45
Discrimination due aux différences de parcours des produits .....	45
Contribution des parois du four .....	47
B - Distribution des isotopes du rubidium et du caesium .....	47
Normalisation .....	47
Discrimination due aux différences de parcours des produits .....	50
Contribution des parois du four pour les cibles d'uranium et de thorium .....	51
Influence des particules secondaires .....	51
4 - Tableaux des valeurs numériques des résultats expérimentaux ..	51
CHAPITRE IV - INTERPRETATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX .....	57
1 - Fission par neutrons thermiques de $^{235}\text{U}$ .....	57
A - Distributions isotopiques et distribution de charge .....	58
B - Neutrons émis dans la fission .....	59
C - Structure en fonction de la charge des produits ..	61
2 - Fission par protons de 156 MeV .....	63
A - Distributions isotopiques et distribution de charge .....	63
B - Calculs sur la fission .....	67
a) Principales étapes du calcul .....	67
b) Résultats de ce calcul .....	76
c) Conclusion .....	80
3 - Fission et Spallation à 24 GeV .....	81
A - Sections efficaces élémentaires pour la fission ...	83
B - Distribution de charge .....	86
a) Cible d'uranium .....	86
b) Cible de tantale .....	88
C - Production d'isotopes riches en neutrons dans la fission à haute énergie .....	91
CONCLUSION .....	93

## DEUXIÈME THÈSE

### Propositions données par la Faculté

Vu et approuvé :

ORSAY

~~Paris~~, le 27 Novembre 19 70

Le Doyen de la Faculté des Sciences,



*G. Poitou*  
G. POITOU.

WAX

XXXXXXXXXXXXXXXXXXXX

XXXXXXXXXXXXXXXXXXXX  
de Paris,